

**Untersuchungen zum Einfluß
magnetisch ferneordneter Phasen auf den
elektronischen Ladungstransport
in metallischen Gläsern**

Dissertation
zur
Erlangung des Grades eines
Doktors der Naturwissenschaften
der
Abteilung für Physik
und Astronomie
an der Ruhr-Universität Bochum

von
Wilhelm Heinrich Kettler
aus
Oberhausen

Bochum 1988





Digitized by the Internet Archive
in 2026

https://archive.org/details/IA41546619_0017

Untersuchungen zum Einfluß magnetisch ferngeordneter Phasen auf den
elektronischen Ladungstransport in metallischen Gläsern

DISSERTATION

zur

Erlangung des Grades eines
Doktors der Naturwissenschaften

der

Abteilung für Physik
und Astronomie
an der Ruhr-Universität Bochum

von

Wilhelm Heinrich Kettler

aus

Oberhausen

Bochum 1988

Dissertation eingereicht am: 7.1.1988

Tag der mündlichen Prüfung: 12.2.1988

Referent: Prof. Dr. M. Rosenberg

Korreferent: Prof. Dr. H. Neddermeyer

INHALTSVERZEICHNIS

§1	Einführung.....	1
§2	Einordnung der Arbeit in die Gesamtproblematik.....	14
TEIL I : EXPERIMENTELLE DURCHFÜHRUNG.....		18
§3	Probenherstellung und -charakterisierung.....	18
§4	Widerstandsmeßaufbau.....	20
§5	Ein differentielles ac-Verfahren zur Thermokraftmessung....	30
TEIL II : MESSERGEBNISSE UND DISKUSSION.....		45
§6	Nachweis eines magnetischen Beitrags zum spezifischen elektrischen Widerstand amorpher $\text{Fe}_{80}\text{B}_{20-x}\text{C}_x$ - und und $\text{Fe}_{82}\text{B}_{18-x}\text{Ge}_x$ -Legierungen.....	45
§7	Spinunordnungs-Streuung in magnetisch verdünnten metallischen $\text{Fe}_x\text{Ni}_{80-x}\text{B}_{16}\text{Si}_4$ -, $\text{Co}_x\text{Ni}_{80-x}\text{B}_{16}\text{Si}_4$ - und $\text{Fe}_x\text{Ni}_{77-x}\text{B}_{13}\text{Si}_{10}$ -Gläsern.....	70
§8	Absolute Thermokraft amorpher $\text{Fe}_x\text{Ni}_{80-x}\text{B}_{20}$ -Legierungen....	103
§9	Abschließende Bemerkungen.....	131
Literaturverzeichnis.....		134

§1 Einführung

Nachdem in der Vergangenheit in der Festkörperphysik wesentliche Fortschritte im Verständnis geordneter (kristalliner) Systeme erreicht werden konnte /1/, rücken die ungeordneten Festkörper immer mehr ins Blickfeld der Physiker. In der Natur liegen die festen Körper größtenteils nicht im idealen kristallinen Zustand vor; vielmehr ist z. B. durch Fehlstellen, Versetzungen, Fremdatome und Gitterschwingungen immer ein gewisser Grad an Unordnung vorhanden. Gerade der Einbau von Störungen im Kristallgitter metallischer Werkstoffe wird heute gezielt zur Veränderung von Materialeigenschaften genutzt /2/. Das Resultat ist eine neue Generation außergewöhnlich fester, hitze- und korrosionsbeständiger Superlegierungen (z. B. Ni-Al). Erst kürzlich sind Materialien (wie z. B. Al-Mn) mit einem neuen Ordnungszustand fünfzähliger Symmetrie (sog. Quasikristalle) entdeckt worden /3/, der eines der ältesten und fundamentalen Theoreme der Kristallographie verletzt und zwischen kristallinen und amorphen Festkörpern anzusiedeln ist. Bei den ungeordneten und amorphen Festkörpern sind die Abweichungen von der vollen Kristallsymmetrie kein Störeffekt mehr sondern grundsätzliches Charakteristikum. Amorphe Systeme weisen eine Reihe neuartiger Phänomene auf, deren Untersuchung und Interpretation eine Herausforderung darstellt, da zu ihrer Beschreibung neuartige theoretische Konzepte und experimentelle Analysen erforderlich sind. So kann die Struktur nicht mehr als Störung eines kristallinen Systems betrachtet werden und wird besser durch Verteilungen beschrieben, und Elektronen und Anregungen werden durch die Unordnung zum Teil lokalisiert /4/, ein Phänomen, das spezifisch für den ungeordneten Zustand ist.

Die Existenz amorpher Ferromagnete ist bereits 1960 von Gubanov /5/ theoretisch vorausgesagt und in der Zwischenzeit in einer Vielzahl theoretischer und experimenteller Arbeiten bestätigt worden (siehe z.B. /6/). Zu den wichtigsten Vertretern amorpher Systeme mit magnetischer Fernordnung gehören die auch in der vorliegenden Arbeit untersuchten Legierungen der 3d Übergangsmetalle (Fe, Co, Ni) mit sogenannten Glasbildnern (P, B, C, Si, Ge) oder 4f Elementen wie z. B. Zr. Typisch für die ferromagnetischen Eigenschaften dieser beiden Klassen amorpher Festkörper im Vergleich zum korrespondierenden Kristall sind eine Abflachung der reduzierten Magnetisierungskurve $M(T)/M(0)$ als Funktion von T/T_c , eine Verringerung des magnetischen Moments $M(0)$, der Curie-Temperatur T_c , der Koerzitivfeldstärke und der magnetischen Anisotro-

pie /7/. Ein Vergleich zwischen amorphen und kristallinen Systemen ist aber nicht immer sinnvoll, da die Mannigfaltigkeit in der Zusammensetzung und der Mischungsbereich der Legierungen für amorphe Systeme i. a. viel größer ist als für kristalline. Daraus ergibt sich zwangsläufig ein breiteres Spektrum physikalischer Eigenschaften und eine größere Zahl von Einflußparametern.

Zu den wichtigen Materialparametern eines Stoffes gehören die Transportkoeffizienten wie der spezifische elektrische Widerstand ρ und die Thermokraft S . Ihre Untersuchung ist sowohl von großem experimentellen als auch theoretischen Interesse, da sie eng mit den mikroskopischen Eigenschaften des untersuchten Festkörpers verknüpft sind /8/. Die Transportphänomene beruhen auf der Bewegung von Leitungselektronen unter dem Einfluß äußerer Felder, wobei die Leitungsvorgänge in komplizierter Weise von den Eigenschaften aller Subsysteme des Festkörpers (Elektronen, Phononen, Magnonen) und ihrer gegenseitigen Wechselwirkungen abhängen. Generell gibt jede Abweichung des Streuersystems eines Festkörpers von einer periodischen Anordnung Anlaß zu Streuprozessen, die die ungehemmte Beschleunigung der Elektronen durch äußere Felder behindern und die mittlere freie Weglänge der beweglichen Ladungsträger begrenzen. Bei kristallinen Systemen kann z. B. das starke Anwachsen des spezifischen elektrischen Widerstands ρ mit der Temperatur und das Auftreten eines Restwiderstands durch thermisch angeregte Gitterschwingungen und atomare Fehlstellen erklärt werden.

Die Transporteigenschaften amorpher Systeme unterscheiden sich in fundamentaler Weise von denen korrespondierender kristalliner Legierungen. So kann der Widerstand dieser metallischen Gläser im wesentlichen durch einen relativ hohen Restwiderstand ($\sim 40 - 400 \mu\Omega \text{ cm}$) und einen kleinen temperaturabhängigen Term charakterisiert werden, der im gesamten Existenzbereich der amorphen Phase zu Widerstandsänderungen von nur wenigen % vom Restwiderstand führt. Die Restwiderstände sind damit etwa um ein bis zwei Größenordnungen höher als z. B. die Widerstände von kristallinem Fe oder Ni bei Raumtemperatur und lassen mittlere freie Weglängen der Leitungselektronen in der Größenordnung der interatomaren Abstände abschätzen. Mit dem Anwachsen des Restwiderstands geht gleichzeitig eine Verringerung des Temperaturkoeffizienten $\alpha_T = d \ln \rho / dT$ einher, wobei hohe Restwiderstände mit sehr kleinen positiven oder negativen Temperaturkoeffizienten verbunden sind /9, 10/. Das Auftreten negativer Temperaturkoeffizienten steht in krassem Widerspruch zum Bloch-Grüneisen Modell, das auf Grund zunehmender Elektron-Phonon Streuung

ein Anwachsen des Widerstands mit der Temperatur vorhersagt. Zudem sind die Temperaturkoeffizienten α_T um ein bis zwei Größenordnungen kleiner als bei kristallinen Metallen. Unabhängig vom Vorzeichen des Temperaturkoeffizienten bei höheren Temperaturen wird im Tieftemperaturbereich ein zusätzlicher Streumechanismus aktiv, der mit abnehmender Temperatur einen Anstieg des Widerstands verursacht /11, 12/. Bei Systemen mit positivem α_T führt dies zu einem Kondo-ähnlichen Widerstandsminimum, das sowohl bei nicht-magnetischen als auch magnetischen metallischen Gläsern der oben genannten Kategorie zu beobachten ist. Nur bei einigen amorphen Legierungen ist erst bei sehr tiefen Temperaturen (mK-Bereich) eine Tendenz zur Sättigung im $\rho(T)$ -Verhalten erkennbar.

Das Thermokraft-Verhalten nicht-magnetischer metallischer Gläser ist viel strukturloser (und insofern einfacher) als das vergleichbarer kristalliner Materialien /13-15/. So wird z. B. im Tieftemperaturbereich das für kristalline Metalle typische Phänomen der Phononen-Mitführung (phonon-drag), das zu einer teilweise erheblichen Erhöhung der Thermokraft S führt, bei amorphen Materialien nicht beobachtet. Vielmehr variiert S im gesamten Temperaturbereich nahezu linear mit der Temperatur und ist betragsmäßig i. a. sehr klein (typischerweise kleiner als $2\mu\text{V/K}$ bei Raumtemperatur). Abweichungen von der Linearität weisen sich bei tiefen Temperaturen durch eine Erhöhung der Ableitung dS/dT aus. Darüber hinaus scheint bei einigen spezifischen amorphen Systemen eine Korrelation zwischen dem Vorzeichen der Thermokraft und dem des spezifischen elektrischen Widerstands der Art zu bestehen, daß ein negatives S mit einem positiven α_T verknüpft ist und umgekehrt.

Eine weitere Besonderheit des Widerstands- und Thermokraft-Verhaltens amorpher Übergangsmetall-Legierungen ergibt sich aus der Existenz magnetisch ferngeordneter Phasen. Unterhalb der Curie-Temperatur wird das Verhalten der Transportkoeffizienten wesentlich durch den Grad der magnetischen Ordnung beeinflusst. Z. B. macht sich die starke Abnahme der Magnetisierung in der Nähe der Curie-Temperatur im Widerstand ρ i. a. durch einen deutlichen Anstieg bemerkbar und führt am Curie-Punkt quasi zu einem Knick in der $\rho(T)$ -Beziehung /16/. Untersucht man den Tieftemperaturwiderstand amorpher Ferromagnete, so muß man die Wechselwirkung der Leitungselektronen mit den Elementaranregungen des Spinsystems (Magnonen) berücksichtigen, die bei hinreichend tiefen Temperaturen idealen Quasiteilchen Charakter haben. Die Thermokraft S amorpher Ferromagnete ist i. a. negativ und zeichnet sich neben der Erhöhung im Absolutwert gegenüber nicht-magnetischen amorphen Metallen durch eine

deutlich nicht-lineare und häufig nicht-monotone Temperaturabhängigkeit aus /17, 18/.

Zum gegenwärtigen Zeitpunkt liegt zum Verständnis der Transportkoeffizienten amorpher Ferromagnete keine einheitliche und quantitative Theorie vor, die eine genaue Kenntnis der Elektronenstruktur, der Spektren der Quasiteilchen (z. B. Phononen, Magnonen) und der Elektron-Elektron- und Elektron-Quasiteilchen-Wechselwirkung voraussetzt. Diese Vielteilcheneffekte können nicht in voller Allgemeinheit behandelt werden, da sich zusätzlich zum Vielteilchenaspekt in amorphen Legierungen durch die fehlende Translationsinvarianz erhebliche Schwierigkeiten bei der Berechnung der Elektronen- und Quasiteilchen-Spektren ergeben. Die Quasiimpulsquantenzahl k , die bei kristallinen Systemen eine Charakterisierung der elektronischen Zustände gestattet, ist bei ungeordneten Systemen nicht mehr scharf definiert, und für den tatsächlichen elektronischen Eigenzustand liegt eine Verteilung von ebenen Wellenzuständen vor /19/. Um bei der theoretischen Beschreibung der Transporteigenschaften amorpher Ferromagnete überhaupt überschaubar und diskutierbare Resultate zu erhalten, ist man von Anfang an auf drastische Näherungen angewiesen. So wird auch im Rahmen der Transporttheorie weithin von dem üblichen Ansatz der Beschreibung der Leitungselektronen durch ebene Wellenzustände Gebrauch gemacht. In der Mehrzahl der veröffentlichten Arbeiten wird darüber hinaus nur der Einfluß einzelner Streumechanismen auf die Transportkoeffizienten amorpher Systeme diskutiert. Insofern ist die Interpretation experimenteller Ergebnisse in keiner Weise trivial, da die Transportkoeffizienten neben der Abhängigkeit von den genannten intrinsischen Mechanismen z. B. durch das freie Volumen als Folge unterschiedlicher Abschreckgeschwindigkeiten bei der Herstellung, innere Spannungszustände, strukturelle Relaxation oder Mikrokristallinität beeinflusst werden können.

Zur Erklärung der Transporteigenschaften amorpher Metalle sind eine Reihe von theoretischen Ansätzen gemacht worden, die alle verschiedene Teilaspekte des experimentellen Datenmaterials erklären können /13-15/. Aus der Vielfalt dieser Ansätze wären hier besonders das Faber-Ziman Diffraktionsmodell /20, 21/, das Mott'sche s-d Modell /22/, phononeninduziertes Tunneln /23, 24/, quantenmechanische Effekte beginnender Lokalisierung /4, 28/ und das sd-Austausch-Modell /25-27/ zu nennen. Die schon erwähnte, von Mooij /9/ experimentell gefundene Korrelation zwischen Temperaturkoeffizient $\alpha_T = d \ln \rho / dT$ und Widerstand ρ wird dabei häufig als Prüfstein theoretischer Modelle angesehen. In dieser Mooij-

Korrelation kam dem kritischen Widerstand $\rho_c \approx 150 \mu\Omega \text{ cm}$ eine besondere Bedeutung zu als Grenzwert für die Trennung zwischen positiven ($\rho < \rho_c$) und negativen Temperaturkoeffizienten ($\rho > \rho_c$).

Wegen der engen Verwandtschaft in der Struktur zwischen amorphen Systemen und Flüssigkeiten hat Sinha /29/ vorgeschlagen, die Theorie flüssiger Metalle (Faber-Ziman Modell) zur Erklärung des Transportverhaltens amorpher Metalle heranzuziehen. Unter der Annahme quasifreier Elektronen und Darstellung der Wechselwirkungsenergie eines s-Elektrons mit dem Atomverband als Überlagerung abgeschirmter atomarer Potentiale ergibt sich durch Lösung der Boltzmann-Gleichung in erster Born'scher Näherung eine Beziehung für den spezifischen elektrischen Widerstand

$$\rho = \frac{12\pi\Omega_c}{e^2 n v_F} \int_0^1 d\left(\frac{q}{2k_F}\right) \left(\frac{q}{2k_F}\right)^3 S^p(q) |T_{\underline{k}\underline{k}'}|^2, \quad (q=|\underline{k}-\underline{k}'|)$$

in der Potential- und Strukturanteil separat eingehen. Der Widerstandsstrukturfaktor $S^p(q)$ bestimmt dabei vollständig die Temperaturabhängigkeit von ρ , da er alle dynamischen Effekte enthält. Der Potentialanteil $T_{\underline{k}\underline{k}'}$ kann in Pseudo-Potential-Näherung /30/ oder im Rahmen des Streukonzepts /31/ berechnet werden. Das Streukonzept ist für die Behandlung der Übergangsmetalle und ihrer Verbindungen besonders geeignet, da die muffin-tin Potentialkonstruktion sowohl die Vorstellung sich frei ausbreitender Elektronen, als auch den Einfluß der tiefen Ionenpotentiale berücksichtigt. Der Widerstandsstrukturfaktor, der sich bei hohen Temperaturen auf den geometrischen Strukturfaktor $S(q)$ reduziert, ist in einer Reihe von Arbeiten /32/ in verschiedenen Näherungen für den dynamischen Strukturfaktor $S(q, \omega)$ berechnet worden. Für die asymptotische Temperaturabhängigkeit von ρ wird in Übereinstimmung mit experimentellen Ergebnissen für $T \ll \theta_D$ (θ_D = Debye-Temperatur) ein T^2 - und für $T \geq \theta_D$ ein $\pm T$ -Gesetz abgeleitet. Weiterhin zeigt sich, daß das Vorzeichen des Temperaturkoeffizienten α_T von ρ eng mit der Lage des doppelten Fermi-Wellenvektors $2k_F$ bezüglich der Position k_p des ersten Maximums im Strukturfaktor $S(q)$ verknüpft ist; α_T ist wegen der Intensitätsreduktion des Strukturfaktors mit zunehmender Temperatur negativ für $S(2k_F) > 1$ (d. h. $2k_F \approx k_p$) und wegen der damit einhergehenden Aufweitung positiv für $S(2k_F) < 1$ (d. h. $2k_F \gtrless k_p$). Auch das Vorzeichen der Thermokraft S , die über die Mott-Beziehung

$$S = \frac{\pi^2}{3} \frac{k_B}{e} \frac{k_B T}{E_F} \frac{\partial \ln \rho(E)}{\partial \ln E} \bigg|_{E=E_F}$$



berechnet wird, ist durch diese Bedingungen festgelegt. So sollte $S > 0$ sein für $\alpha_T < 0$ und umgekehrt. Das Faber-Ziman Modell gibt somit eine einfache und anschauliche Erklärung der Mooij-Korrelation. Größe und Temperaturabhängigkeit der Thermokraft S werden durch den Thermokraftparameter $\xi = \partial \ln p(E) / \partial \ln E_F$ bestimmt. Ändert sich ξ nur schwach mit der Temperatur, sollte nach der oben angegebenen Gleichung S näherungsweise linear mit T variieren, was in zahlreichen Experimenten bestätigt wird /14, 15/. Wie schon erwähnt, beobachtet man jedoch im $S(T)$ -Verhalten bei tiefen Temperaturen ($T < 100$ K) ein charakteristisches "Knie", das von Jäckle /33/ mit der Erhöhung der Thermokraft für $T < \theta_D$ auf Grund der Massenrenormierung durch die Elektron-Phonon Wechselwirkung erklärt wird. Dieser schon von Opsal et al. /34/ für kristalline Metalle vorhergesagte Effekt ist bei amorphen Systemen beobachtbar, da hier die Phononen-Mitführung vernachlässigt werden kann. Die Elektron-Phonon Streurate ist klein gegenüber der Streurate der Phononen an der ungeordneten Struktur, so daß sich das Phononensystem praktisch immer im thermischen Gleichgewicht befindet. Trotz der erfolgreichen Anwendung des Faber-Ziman Diffraktions Modells auf eine Vielzahl amorpher Metalle und Legierungen /14, 15/ sind bei stark streuenden, hochresistiven Systemen aus theoretischer Sicht Bedenken anzumelden, da hier die mittlere freie Weglänge der Leitungselektronen in die Größenordnung der interatomaren Abstände kommt und damit die Voraussetzungen für die Gültigkeit der kinetischen Boltzmann-Theorie verletzt werden.

Bei metallischen Gläsern auf Übergangsmetall-Basis kommt häufig das Mott'sche s-d Streu-Modell /22/ zur Anwendung. Da die Bandstruktur dieser Materialien durch die Überlagerung eines breiten s- und eines schmalen d-Bandes mit gemeinsamer Fermi-Energie charakterisiert werden kann, setzt sich die Leitfähigkeit σ gemäß $\sigma = \sigma_s + \sigma_d$ additiv aus den Beiträgen der beiden Teilbänder zusammen. Dabei wird angenommen, daß wegen der Verhältnisse der effektiven Massen σ_s den Hauptbeitrag zur Leitfähigkeit liefert. Die Mott'sche Annahme besteht nun darin, daß bei kleinen mittleren freien Weglängen der beweglichen Ladungsträger der dominante Beitrag zum Widerstand von der Streuung der sp-Elektronen in die Lochzustände des d-Bandes verursacht wird. Da die Zahl dieser Lochzustände proportional zur d-Zustandsdichte $N_d(E_F)$ bei der Fermi-Energie ist, ist die elektrische Leitfähigkeit durch $\sigma \approx \sigma_s \sim N_s(E_F) / N_d(E_F)$ gegeben. Brown et al. /35/ geben im Rahmen eines muffin-tin Potential-Modells für den Widerstand ρ und die Thermokraft S folgende Beziehungen an,

$$\rho \approx \frac{12 \pi^4 \hbar k_F \Gamma}{e^2 k_0^5} N_d(E_F) \quad ,$$

$$S \approx \frac{\pi^2}{3} \frac{k_B}{|e|} \frac{k_B T}{E_F} \left\{ \frac{1}{2} + \frac{d \ln N_d(E)}{d \ln E} \bigg|_{E=E_F} \right\} \quad ,$$

in denen $k_0^2 = 2mE_0/\hbar^2$ und Γ und E_0 Breite bzw. Energie der d-Resonanz bezeichnen. Auch dieses Modell liefert eine einfache Erklärung der Mooij-Korrelation und für das häufig beobachtete positive Vorzeichen der Thermokraft. Für den Fall dominierender s-d Streuung führt die Verschiebung und Aufweitung des Fermi-Niveaus mit steigender Temperatur bei einem mehr als halb gefüllten d-Band zu einer Abnahme des spezifischen elektrischen Widerstands mit der Temperatur, d. h. $\alpha_T < 0$, und einem negativen Vorzeichen der Thermokraft. Bei einem weniger als halb gefüllten d-Band sollte dagegen S positiv sein.

Die beiden beschriebenen Modelle gründen sich auf dem Modell quasi freier Elektronen und der Näherung schwacher Streuung, die bei sehr kleinen mittleren freien Weglängen der Leitungselektronen ihre Gültigkeit verliert. Eine Beschreibung der Leitfähigkeit muß dann die aus dem Verlust der Gitterperiodizität resultierenden Potentialschwankungen und deren Einfluß auf die Elektronenzustände berücksichtigen, die keine Bloch-Wellen mehr sind. In den Arbeiten von Belitz et al. /23, 24/ wird eine Theorie für die elektrische Leitfähigkeit von hochresistiven Metallen mit starker Unordnung entwickelt, die die selbstkonsistente Strom-Relaxationstheorie des Metall-Isolator Übergangs von Götze /36/ erweitert und im Grenzfall schwacher Streuung die Ergebnisse quasi freier Elektronen beinhaltet. Für die Gleichstromleitfähigkeit leiten Belitz et al. /23, 24/ die Beziehung

$$\sigma = e^2 \left\{ \frac{n}{m(M_0 + M_T)} + L_0 + L_T \right\}$$

ab, die einen zusätzlichen Beitrag enthält, der mit phononenunterstütztem Tunneln der Leitungselektronen erklärt wird. In dieser Formel entsprechen M_0 und M_T verallgemeinerten elastischen und inelastischen Streuraten und L_0 und L_T statistischen Tunnelraten auf Grund statischer und dynamischer Unordnung. Streu- und Tunnel-Beiträge können hier wie parallel geschaltete Widerstände interpretiert werden. Auf die Möglichkeit phononenunterstützter Tunnelprozesse in stark gestörten Systemen ist schon von Jonson und Girvin /37/ hingewiesen worden, die als Ur-

sache für das Auftreten dieses Phänomens den Zusammenbruch der adiabatischen Näherung und der damit verbundenen verringerten Effizienz der Elektron-Phonon Wechselwirkung ansehen. Eine Analyse der obigen Formel zeigt, daß bei schwacher Unordnung die Gleichstromleitfähigkeit durch die statischen Tunnelprozesse verringert und bei starker Unordnung erhöht wird. Dieses Verhalten entspricht der von Mooij gefundenen Korrelation zwischen α_T und ρ .

In den auf der Boltzmann'schen Transporttheorie fußenden Ansätzen geht man davon aus, daß sich die Ladungsträger zwischen den Streuvorgängen entlang klassischer Trajektorien bewegen und Interferenzerscheinungen zwischen den Streuprozessen verschiedener Streuzentren vernachlässigt werden können. Kommt die mittlere freie Weglänge in die Größenordnung ihrer de Broglie Wellenlänge, was bei hochresistiven Systemen der Fall ist ($\rho > 100 \mu\Omega \text{ cm}$), ist die Boltzmann'sche Transporttheorie strenggenommen nicht mehr anwendbar und es sind Modifikationen dieses quasi-klassischen Modells zu erwarten, die in keinem der beschriebenen theoretischen Ansätze berücksichtigt werden. Gemeint sind hier Beiträge der Quanteninterferenz und der Elektron-Elektron Wechselwirkung. Interferenzen von Weg-Amplituden bei der Teilchendiffusion zwischen zwei Punkten sind i. a. vernachlässigbar, da die möglichen Trajektorien verschieden lang sind und die Weg-Amplituden unterschiedliche Phasenbeziehungen haben, was im Mittel zu keiner konstruktiven Interferenz führt. Fallen aber Ausgangs- und Endpunkt zusammen, so ist die quantenmechanische Rückkehrwahrscheinlichkeit doppelt so groß wie die klassische, d. h. quantenmechanische Teilchen sind in einer ungeordneten Umgebung (bei tiefen Temperaturen) weniger beweglich als klassische. Dies führt dann zu einer entsprechend geringeren Leitfähigkeit. Neuere Untersuchungen von Tsuei /10/ des Zusammenhangs zwischen α_T und ρ haben gezeigt, daß dem von Mooij /9/ angegebenen kritischen Widerstandswert $\rho_c \approx 150 \mu\Omega \text{ cm}$, bei dem α_T das Vorzeichen wechselt, keine fundamentale Bedeutung in dem Sinne zukommt, als sei dies ein universeller Grenzwert für die Trennung zwischen positiven und negativen Temperaturkoeffizienten. Dem revidierten Mooij-Plot /10/ ist vielmehr zu entnehmen, daß der kritische Widerstand ρ_c sehr stark von dem betrachteten System abhängt und zwischen 30 und 350 $\mu\Omega \text{ cm}$ variieren kann. Erst für Widerstände größer als 200 $\mu\Omega \text{ cm}$ ist eine Korrelation zwischen α_T und ρ zu erkennen, wie sie von Mooij für einen größeren Widerstandsbereich vermutet wurde. Die Hauptursache für die Nicht-Universalität der Mooij-Korrelation und dem Auftreten negativer Temperaturkoeffizienten hochohmiger amorpher Metal-

le sieht Tsuei /10/ im Zusammenspiel quantenmechanischer Effekte beginnender Lokalisierung (mit negativen Beiträgen zu α_T) und der klassischen Boltzmann'schen Elektron-Phonon Streuung (mit positiven Beiträgen zu α_T). Der Übergangspunkt ρ_c hängt von charakteristischen Materialparametern wie der Größe des Fermi-Wellenvektors und der elastischen mittleren freien Weglänge der Elektronen ab. Eine monotone Korrelation zwischen α_T und ρ liegt somit nur für spezifische ungeordnete metallische Systeme vor.

In diesem Zusammenhang ist auch das Auftreten des zusätzlichen Streumechanismus' im Tieftemperaturbereich von Bedeutung, der mit abnehmender Temperatur einen Anstieg des Widerstands verursacht /11-13/. Erklärungsversuche dieser experimentellen Beobachtungen durch Streuung von Elektronen an strukturellen Zwei-Niveau Systemen /38/ oder durch Kondo-Streuung /39/, die beide zu einem logarithmischen Verhalten von ρ Anlaß geben, haben sich wegen der fehlenden Größenordnung oder experimenteller Widersprüche /40/ als nicht tragfähig erwiesen. Eine Reanalyse älterer experimenteller Ergebnisse /11, 12/ hat vielmehr gezeigt, daß dieser Widerstandsanstieg über mehrere Größenordnungen der Temperaturskala einem $\sqrt{T}$ -Gesetz folgt, das von verschiedenen Skalentheorien zum Metall-Isolator Übergang vorausgesagt wird /4, 28/. Da außerdem die aus diesen Messungen abgeleitete Korrelationslücke /12/ wie theoretisch erwartet mit dem inversen Quadrat des Widerstands skaliert, könnte die Tieftemperaturanomalie im Widerstand als Vorbote von Lokalisierungseffekten in einem dreidimensionalen wechselwirkenden Elektronensystem interpretiert werden. Diese Problematik ist aber noch Gegenstand aktueller Forschung. Insbesondere hat Kaiser /41/ kürzlich gezeigt, daß die Streuung an strukturellen Zwei-Niveau Tunnelsystemen indirekt über die Quanteninterferenz einen erheblich größeren Beitrag zum Widerstand liefern könnte als über den direkten Weg durch die Boltzmann-Gleichung. Eine Interpretation der Widerstandsanomalie muß daher immer in Verbindung mit dem betrachteten System gesehen werden.

Für die theoretische Beschreibung der Transporteigenschaften amorpher Ferromagnete sind bisher fast ausschließlich lokale Modelle zur Anwendung gekommen /25-27/. Dabei wird vom Bandcharakter der d-Zustände, die im Rahmen des Heisenberg-Modells durch ihre am Ort R_i lokalisierten Spinmomente $\underline{S}_i$ beschrieben werden, abgesehen, da sie wegen ihrer hohen effektiven Masse nicht direkt zum Ladungstransport beitragen. Die Wechselwirkung zwischen den Leitungselektronen und den lokalisierten atomaren Momenten wird in der Gestalt des sd-Austauschoperators

$$H_{sd} = -2 \sum_i J_{sd}^i (\mathbf{r} - \mathbf{R}_i) \left\{ s^z S_i^z + \frac{1}{2} (s^+ S_i^- + s^- S_i^+) \right\}$$

berücksichtigt. Wie bei der theoretischen Analyse des strukturellen Widerstandsbeitrags ist man auch bei der Berechnung der elektronischen Übergangsraten für magnetische Streuprozesse mit dem Problem konfrontiert, daß die Spinverteilung in amorphen Ferromagneten inhomogen ist. Da sind auf der einen Seite statische Störungen der Spinordnung zu nennen als Folge fehlender Fernordnung in der topologischen Anordnung der magnetischen Atome und lokaler Fluktuationen der magnetischen Momente, und auf der anderen Seite dynamische Störungen der Spinordnung durch thermisch angeregte Spinwellen. Bei der Streuung von Leitungselektronen an langwelligen, ungedämpften Magnonen tragen zwei Prozesse zum spinabhängigen Tieftemperaturwiderstand amorpher Ferromagnete bei. Für die Streuung an der statischen Spinordnung, die elastisch erfolgt, zeichnet der longitudinale Anteil des sd-Austauschoperators verantwortlich. Diese Komponente der elektronischen Übergangsrate ist proportional zum Quadrat der Magnetisierung und führt auf einen magnetischen Restwiderstand $\rho_{\text{mag}}(0)$ und einen temperaturabhängigen, negativen $T^{3/2}$ -Term zu ρ_{mag} . Der transversale Anteil des sd-Austauschoperators beschreibt die Elektron-Magnon Wechselwirkung. Die hierdurch induzierten elektronischen Übergänge erfolgen unter Spinumkehr und sind mit der Emission bzw. Absorption eines Magnons verbunden. Neben dem auch für kristalline Ferromagnete abgeleiteten kohärenten T^2 -Spinwellen Term führt die Transversalkomponente auf einen positiven inkohärenten $T^{3/2}$ -Term, der den elastischen $T^{3/2}$ -Term überkompensiert. Eine Abschätzung dieser Beiträge zeigt, daß im Tieftemperaturbereich für hinreichend große Unordnung eine charakteristische $T^{3/2}$ -Abhängigkeit des Spinunordnungs-Widerstands zu erwarten ist. Oberhalb der Curie-Temperatur ($T > T_c$) ist im Rahmen des beschriebenen Spinunordnungs-Modells der magnetische Widerstandsbeitrag konstant und enthält keine strukturellen Informationen mehr, da im asymptotischen Fall die räumlichen Korrelationen des Spinsystems vernachlässigt werden können und die Streuung der Leitungselektronen an den magnetischen Atomen im wesentlichen Ein-Platz Charakter hat. Bei der Analyse experimenteller Ergebnisse sind natürlich auch die anderen bisher diskutierten Widerstandsbeiträge zu berücksichtigen, wobei in Systemen mit nicht zu großem Restwiderstand ($\rho < 100 \mu\Omega \text{ cm}$) die elektrostatische Wechselwirkung der Leitungselektronen mit dem Atomverband (Faber-Ziman Modell) als ausreichende Näherung angesehen werden kann. Im Rahmen des Einband-Modells ist bis zur zweiten Ordnung im

Streupotential die Matthiessen'sche Regel erfüllt, nach der die einzelnen Beiträge der Potential- und Spinstreuung additiv zum Gesamtwiderstand beitragen. Das beschriebene Ein-Band Modell ist strenggenommen nur auf schwach ferromagnetische Systeme anwendbar, bei denen die Spinaufspaltung der d-Bänder klein ist und die Unterschiede in den partiellen Zustandsdichten der beiden d-Teilbänder bei der Fermi-Energie bei der Auswertung der Transportintegrale vernachlässigt werden können. Bereits bei der Darstellung des Mott'schen s-d Modells ist darauf hingewiesen worden, daß bei Übergangsmetallen die Streuung von s-Elektronen in die Lochzustände des d-Bands eine wichtige Rolle spielen kann. Bei Ferromagneten ergeben sich infolge der Aufspaltung und unterschiedlichen Besetzung der $d\uparrow$ - und $d\downarrow$ -Bänder für $s\uparrow$ - und $s\downarrow$ -Elektronen unterschiedliche atomare Streuquerschnitte, was verschiedene Teilrestwiderstände $\rho_0^\uparrow$ und $\rho_0^\downarrow$ nach sich zieht. In Verbindung mit der Elektron-Magnon Wechselwirkung, die diese beiden Teilströme mischt, ergeben sich für das Zwei-Strom Modell Abweichungen von der Matthiessen'schen Regel, für deren Größenordnung das Verhältnis $\alpha = \rho_0^\downarrow / \rho_0^\uparrow$ der partiellen Restwiderstände ein entscheidender Parameter ist /42/. Dieses Modell ist erfolgreich zur Interpretation des Widerstandsverhaltens einer Vielzahl kristalliner ferromagnetischer Legierungen herangezogen worden /43/. In die Diskussion des Widerstandsverhaltens amorpher Ferromagnete sind diese Überlegungen bisher nicht eingeflossen. Nach einer unveröffentlichten theoretischen Analyse des Tieftemperaturwiderstands amorpher Ferromagnete im Rahmen des Zwei-Strom Modells von Herzer /27/ ergibt sich im Spinwellen-Gebiet strenggenommen kein einfaches Potenzgesetz mehr für die Temperaturabhängigkeit von ρ , wodurch das Spektrum der experimentell gefundenen T^n -Abhängigkeit mit $n \approx 1.5 - 2$ für $\rho(T)$ /13, 14/ teilweise verständlich wird. Eine quantitative experimentelle Verifizierung dieser Modelle steht aber noch aus.

Die Thermokraft amorpher Ferromagnete ist bisher in nur wenigen Arbeiten im Rahmen der vorgestellten Ein- und Zwei-Strom Modelle unter Verwendung unterschiedlicher Näherungen theoretisch untersucht worden /26, 44, 45/. Naturgemäß haben die abgeleiteten Formeln aber nur Modell-Charakter, da die verwendeten Näherungen und Annahmen der Theorie des thermoelektrischen Transports kristalliner Ferromagnete entlehnt sind, die das experimentelle Datenmaterial nur unzureichend beschreibt /46/. In der Arbeit von Richter et al. /26/ wird im Rahmen des Spinunordnungs-Modells der magnetische Thermokraftbeitrag $S_{\text{mag}}(T)$ homogener amorpher Ferromagnete mit Hilfe der Mott-Formel in Molekularfeld-Nähe-

nung berechnet. Insofern kann die theoretische $S_{\text{mag}}(T)$ -Beziehung, die die Thermokraft in Abhängigkeit von magnetischen Größen beschreibt und nicht-linear mit der Temperatur variiert, nur als Interpolationsformel angesehen werden. Vorzeichen und Krümmung von $S_{\text{mag}}(T)$ sind mit der aktuellen Position von $2k_F$ im Strukturfaktor verknüpft. Die Gesamtthermokrast wird für eine kombinierte Spin- und Potentialstreuung nach der Nordheim-Gorter Regel diskutiert, nach der die Thermokraftbeiträge der einzelnen Streumechanismen mit den zugehörigen relativen Widerstandsbeiträgen zu wichten sind /46/. Mit diesen Ergebnissen läßt sich das Vorzeichen und die nicht-monotone Temperaturabhängigkeit von S amorpher Ferromagnete qualitativ verstehen.

Korenblit /44/ und Herzer /45/ gehen von dem Zwei-Strom Modell aus und berechnen das Tieftemperaturverhalten der Thermokraft amorpher Ferromagnete. Diese Untersuchungen zeigen, daß die Elektron-Magnon Wechselwirkung großen Einfluß auf die Temperaturabhängigkeit von S haben kann. Der abgeleitete Zusatzbeitrag zur Thermokraft, der aus der Asymmetrie der Elektron-Magnon Streuung und den unterschiedlichen Resonanz-Streuquerschnitten der $s\uparrow$ - und $s\downarrow$ -Elektronen resultiert, ist negativ und variiert stark nicht-linear mit der Temperatur. Wie beim Widerstand zerfällt dieser Zusatzbeitrag oberhalb der Einfriertemperatur für kohärente Streuprozesse in kohärente und inkohärente Anteile mit charakteristischen T - bzw. $T^{3/2}$ -Abhängigkeiten. Für die Größenordnung des Zusatzbeitrags, der in schwach ferromagnetischen Systemen verschwindet, zeichnet wieder das Verhältnis $\alpha = \rho_0^\downarrow / \rho_0^\uparrow$ der partiellen Restwiderstandsbeiträge verantwortlich, das von der relativen Besetzung der d-Teilbänder abhängt und eine deutliche Konzentrationsabhängigkeit aufweisen kann. Ein direkter Vergleich mit dem von Kasuya /47/ für kristalline Ferromagnete abgeleiteten Ergebnis, der den Einfluß der eingefrorenen Unordnung auf das Thermokraftverhalten zeigen sollte, ist hier leider nicht möglich, da die genannten Autoren unterschiedliche Näherungsverfahren zur Lösung der Boltzmann-Gleichung benutzt haben. Auch hier steht eine eingehende Analyse experimenteller Daten im Rahmen der geschilderten Modelle noch aus.

Ein weiterer Mechanismus, der für Transportkoeffizienten von Übergangsmetallen bei tiefen Temperaturen von Bedeutung sein könnte, ist die Streuung von s-Elektronen an itineranten d-Elektronen. Dieser Mechanismus ist von Baber /48/ theoretisch untersucht worden, der hier für den Tieftemperaturwiderstand ein T^2 -Gesetz ableitet. Allerdings wirft sowohl die Abschätzung der Größenordnung als auch der experimen-

telle Nachweis dieses Beitrags erhebliche Schwierigkeiten auf und ist nach wie vor strittig. Noch gar nicht untersucht worden ist die Phononenstreuung unter Berücksichtigung von s-d Übergängen.

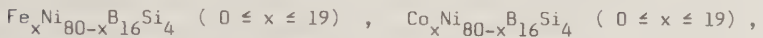
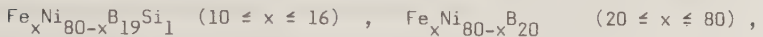
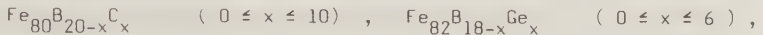
§2 Einordnung der Arbeit in die Gesamtproblematik

Die kurze Übersicht des vorigen Abschnitts über die wesentlichen Transport-Modelle ungeordneter und amorpher Metalle zeigt die Komplexität der Leitungsvorgänge, aber auch den Facettenreichtum dieses Teilgebiets der modernen Festkörperphysik. Die vorliegende Arbeit beschäftigt sich nur mit einem Teilaspekt der geschilderten Phänomene, nämlich dem Einfluß magnetisch ferngeordneter Phasen auf das Widerstands- und Thermokraft-Verhalten metallischer Gläser. Trotz der erdrückenden experimentellen und theoretischen Hinweise auf den Einfluß magnetisch ferngeordneter Phasen auf das Verhalten der Transportkoeffizienten dieser Materialien ist diesem Aspekt in der Literatur wenig Beachtung geschenkt worden, und die Meßergebnisse werden fast ausschließlich im Rahmen von Transportmodellen diskutiert, die die Wechselwirkung zwischen Leitungselektronen und Spinsystem nicht beinhalten. Bis auf wenige Ausnahmen /1, 2/ ist bisher kein Versuch unternommen worden, magnetische Beiträge zum spezifischen elektrischen Widerstand quantitativ zu separieren und den Einfluß der eingefrorenen Unordnung auf das magnetische Widerstandsverhalten amorpher Ferromagnete zu studieren. Bei der Thermokraft ist die experimentelle Sachlage ähnlich, wobei allerdings hier wegen der Abwesenheit einer der Matthiessen'schen Regel äquivalenten Verknüpfung der einzelnen Thermokraftbeiträge der Einfluß des magnetischen Zustands experimentell nicht so leicht quantifizierbar ist. Außerdem haben die wenigen bisher vorgeschlagenen Theorien wegen der stark vereinfachenden Annahmen höchstens Modellcharakter, was die Größenordnung und die Temperaturabhängigkeit der Thermokraft anbelangt, so daß bisher der Anreiz gefehlt hat, diesem Transportkoeffizienten amorpher Ferromagnete mehr experimentelle Aufmerksamkeit zu widmen.

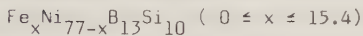
In der vorliegenden Arbeit wird der Versuch unternommen, speziell dieser Fragestellung nachzugehen und den Einfluß des magnetischen Zustands auf die Transporteigenschaften amorpher Ferromagnete systematisch mit dem Ziel zu untersuchen, magnetische Beiträge zu den Transportkoeffizienten Widerstand und Thermokraft quantitativ zu separieren. Nur mit quantitativen Ergebnissen ist die Frage zu beantworten, welchen Einfluß die eingefrorene Unordnung in Abgrenzung zu kristallinen Systemen auf die magnetischen Widerstands- und Thermokraftbeiträge hat und ob die bisher vorgeschlagenen Transport-Modelle die wesentlichen Streumechanismen erfassen.

Hinsichtlich der Zusammensetzung gehören die untersuchten Systeme zu

der Klasse der $TM_{80}M_{20}$ -Legierungen, bei denen TM für eine Kombination der 3d Übergangselemente Fe, Co und Ni steht und die glasbildende M-Komponente für Metalloide wie P, B, C, Ge und Si. Im Einzelnen sind Messungen an



und



durchgeführt worden, wobei für die Auswahl dieser Systeme folgende Kriterien maßgeblich waren. Zum einen ist bei diesen Legierungen die amorphe Phase leicht herstellbar und insofern relativ stabil, und zum anderen sind ihre magnetischen und elektronischen Eigenschaften aus magnetischen, Mößbauer- und NMR-Untersuchungen bzw. Messungen der spezifischen Wärmekapazität größtenteils bekannt. Außerdem umfaßt diese Auswahl sowohl magnetisch konzentrierte Legierungen mit hohen Curie-Temperaturen (auf der Fe- und Co-reichen Seite der $TM_{80}M_{20}$ -Systeme), als auch magnetisch verdünnte Legierungen (auf der Ni-reichen Seite dieser $TM_{80}M_{20}$ -Systeme) mit Curie-Temperaturen unterhalb von Raumtemperatur, bei denen die Transporteigenschaften auch in der Umgebung des Phasenübergangs untersucht werden können.

Zur Messung der Temperaturabhängigkeit von Widerstand und Thermokraft dieser Legierungen ist ein rechnergesteuerter Meßplatz eingerichtet worden (§4 und §5). Da für die experimentellen Anforderungen keine praktikablen kommerziellen Lösungen zur Verfügung standen, ist ein Interface zur vollautomatischen Experimentsteuerung und die darin enthaltene Meßtechnik zur Thermometrie aufgebaut worden. Die Widerstandsmessungen wurden mit einer Wechselstromapparatur mit Kontakten in Vierpolanordnung durchgeführt, mit der leicht relative Widerstandsänderungen von einigen ppm nachgewiesen werden können. Für die Thermokraftmessungen ist ein neues differentielles ac-Meßverfahren entwickelt worden /3/, das alle inhärenten Schwächen herkömmlicher Meßanordnungen umgeht und von der leichteren Verarbeitung kleiner Wechselspannungen mit modernen Lock-In Verstärkern profitiert. Durch den Einsatz von phasensensitiven Gleichrichtern konnte der Störpegel in den Meßkreisen auf kleiner als 1 nV abgesenkt und bei Temperaturdifferenzen unter 10 mK zwischen den Lötstellen eine relative Auflösung von 20 nV/K erreicht werden.

In Kapitel 6 wird das Widerstandsverhalten amorpher $\text{Fe}_{80}\text{B}_{20-x}\text{C}_x$ - ($0 \leq x \leq 10$) und $\text{Fe}_{82}\text{B}_{18-x}\text{Ge}_x$ -Legierungen ($0 \leq x \leq 6$) im Temperaturbereich $4.2 \leq T \leq 300$ K im Rahmen eines einfachen Modells einer kombinierten Potential- und Spin-Streuung diskutiert /4, 5/. Dabei wird angenommen, daß nur s-artige Elektronen zum Ladungstransport beitragen und die Matthiessen'sche Regel erfüllt ist. Diese Untersuchungen stellen eine wesentliche Erweiterung der experimentellen Arbeiten an vergleichbaren amorphen Systemen dar, da durch eine quantitative Analyse der Widerstandsdaten erstmalig gezeigt werden konnte, daß in diesen metallischen Gläsern neben dem dominanten strukturellen Widerstandsbeitrag ein signifikanter magnetischer Widerstandsbeitrag existiert, der im Spinwellen-Gebiet eine quadratische Funktion der Temperatur ist. Darüber hinaus erlaubt die durchgeführte Analyse des strukturellen Widerstandsbeitrags eine Berechnung der Debye-Temperatur θ_D , des Fermi-Wellenvektors k_F und des Strukturfaktors $S_0(2k_F)$. Die ermittelten Werte dieser Größen zeigen klar, daß die erweiterte Faber-Ziman Theorie bei metallischen Gläsern mit stark streuenden Übergangselementen (wie in diesem Fall Fe) nur mit Einschränkungen anwendbar ist.

An die Untersuchung des Widerstandsverhaltens dieser konzentrierten Legierungen schlossen sich Messungen des Widerstands magnetisch verdünnter $\text{Fe}_x\text{Ni}_{77-x}\text{B}_{13}\text{Si}_{10}$ /6/ und $(\text{Fe/Co})_x\text{Ni}_{80-x}\text{B}_{16}\text{Si}_4$ -Legierungen im Temperaturbereich $1.5 \leq T \leq 300$ K für Zusammensetzungen in der Nähe der Perkulationsgrenze an, bei denen p sowohl im ferromagnetischen als auch im paramagnetischen Bereich aufgezeichnet werden kann (Kapitel 7). Hier konnte erstmalig ohne Anpassung der Daten an ein konkretes Transport-Modell nur unter der Annahme der Gültigkeit der Matthiessen'schen Regel durch Subtraktion des Widerstands der Pauli paramagnetischen Basis-Legierung ($\text{Ni}_{77}\text{B}_{13}\text{Si}_{10}$ bzw. $\text{Ni}_{80}\text{B}_{16}\text{Si}_4$) von den Meßdaten der jeweiligen magnetisch ferngeordneten Phase der magnetische Widerstandsbeitrag im gesamten Temperaturbereich ($T \geq T_C$) quantitativ separiert werden. Damit eröffnete sich die Möglichkeit für einen quantitativen Vergleich experimenteller Daten mit den Voraussagen theoretischer Modelle. Zur Diskussion des separierten magnetischen Widerstandsbeitrags wird das von Richter et al. /7/ auf homogene amorphe Ferromagnete zugeschnittene Spinunordnungs-Modell herangezogen und nach einem Vorschlag von Herzer /8/ durch die Einbeziehung statischer Spininhomogenitäten bei der Berechnung der elektronischen Übergangsraten auf inhomogene Systeme erweitert. Mit den abgeleiteten theoretischen Beziehungen lassen sich sowohl die Temperatur- und Konzentrationsabhängigkeit als auch die Grö-

Benordnung von ρ_{mag} im ferromagnetischen Bereich ($T \leq T_c$) quantitativ verstehen. Insbesondere bestätigt der Vergleich die Relevanz der Berücksichtigung von Fluktuationen der lokalen Spinquantenzahlen, die die Größenordnung des Spinunordnungs-Widerstands entscheidend mitbestimmen. Der konstante paramagnetische Widerstandsbeitrag $\rho_{\text{mag}} (T \gg T_c)$ wird durch die magnetischen Momente bestimmt und ist proportional zu dem Konfigurationsmittelwert $\langle S(S+1) \rangle_c$ (S bezeichnet hier die mittleren lokalen Spinquantenzahlen), wobei die Proportionalitätskonstante mit dem für kristalline 3d Metalle und Legierungen ermittelten Wert übereinstimmt. Dieser experimentelle Befund zeigt, daß die eingefrorene Unordnung keinen merklichen Einfluß auf die Größe der sd-Austauschwechselwirkung ausübt. Darüber hinaus weisen diese Untersuchungen bis weit in den paramagnetischen Bereich hinein temperaturabhängige magnetische Beiträge zum spezifischen elektrischen Widerstand aus, deren Existenz bisher nur indirekt nachgewiesen werden konnte. Dieses Verhalten weicht erheblich von dem homogener kristalliner Ferromagnete ab, und die Größenordnung dieser Beiträge wird vermutlich (wie im ferromagnetischen Bereich) durch Inhomogenitäten des Spinsystems bestimmt.

In Kapitel 8 wird die Temperatur- ($4 \leq T \leq 300 \text{ K}$) und Konzentrationsabhängigkeit der absoluten Thermokraft amorpher $\text{Fe}_x\text{Ni}_{80-x}\text{B}_{19}\text{Si}_1$ ($10 \leq x \leq 16$) /9/ und $\text{Fe}_x\text{Ni}_{80-x}\text{B}_{20}$ -Legierungen ($20 \leq x \leq 80$) behandelt. Diese Untersuchungen belegen in eindeutiger Weise, daß das nicht-monotone Thermokraft-Verhalten dieser magnetischen Gläser ursächlich mit der magnetischen Streuung der Leitungselektronen an den momenttragenden Atomen verknüpft ist. Aus einem quantitativen Vergleich dieser Ergebnisse mit den theoretischen Modellen von Kasuya /10/ und Herzer /8/ wird deutlich, daß diese Ansätze nur einige Merkmale der Temperatur- und Konzentrationsabhängigkeit der Thermokraft qualitativ erklären können und im Grunde genommen noch zu grob sind, um dem experimentellen Datenmaterial gerecht zu werden.

Das letzte Kapitel (§9) enthält noch einmal eine abschließendewertung der in dieser Arbeit erzielten Ergebnisse zum Widerstands- und Thermokraft-Verhalten ferromagnetischer metallischer Gläser mit einem kurzen Ausblick auf zukünftige experimentelle und theoretische Arbeiten.

TEIL I : EXPERIMENTELLE DURCHFÜHRUNG

§3 Probenherstellung und -charakterisierung

Alle in der vorliegenden Arbeit untersuchten amorphen Legierungen sind durch schnelles Abschrecken aus der Schmelze mit dem Schmelz-Spinn Verfahren /1/ hergestellt worden. Dabei wird die jeweilige Ausgangslegierung in einem Quarzrohr unter Schutzgasatmosphäre mit einer Hochfrequenzheizung aufgeschmolzen. Das Quarzrohr endet in einer kleinen Düse, aus der die geschmolzene Legierung kontinuierlich mit Überdruck herausgepreßt wird. Dieser Legierungsstrahl trifft unter einem bestimmten Winkel auf ein schnell rotierendes Cu-Rad, dessen hohe Umfangsgeschwindigkeit den Legierungsstreifen verlängert und die Schichtdicke der entstehenden Folie auf etwa 20 μm beschränkt. Mit dieser Methode können beliebig lange Streifen hergestellt werden, wobei die Streifenbreite (typisch 0.5 - 2 mm) eine Funktion der Düsenform, der Umfangsgeschwindigkeit des Cu-Rades und des Druckes ist, mit dem die Schmelze durch die Düse gepreßt wird.

Die amorphen Legierungen für die geplanten Untersuchungen der Transportphänomene sind freundlicherweise von verschiedenen Institutionen zur Verfügung gestellt worden. So sind die $(\text{Fe-Ni})_{80}\text{B}_{20}$, $(\text{Fe-Ni})_{80}\text{B}_{19}\text{P}_1$, $(\text{Fe-Ni})_{80}\text{B}_{19}\text{Si}_1$, $\text{Fe}_{80}(\text{B-C})_{20}$ und $\text{Fe}_{82}(\text{B-Ge})_{18}$ Legierungen bei der General Electric Company (Dr. F. E. Luborsky; New York, USA) hergestellt worden, die $(\text{Fe/Co-Ni})_{80}\text{B}_{16}\text{Si}_4$ -Legierungen stammen vom Institut für Werkstoffe der Elektrotechnik (Dr. M. Sostarich) der Ruhr-Universität Bochum, das $(\text{Fe-Ni})_{77}\text{B}_{13}\text{Si}_{10}$ -System hat uns Dr. Z. M. Stadnik (Jagellonian University, Krakau, Polen) überlassen, und die Quelle für die amorphe $\text{Fe}_{90}\text{Zr}_{10}$ -Legierung ist das Research Institute for Iron, Steel and other Metals (Dr. F. Fukamichi, Sendai, Japan).

Vor Beginn der Messungen ist bei allen Legierungen die Amorphizität mittels Röntgenbeugung sichergestellt worden. Die Diffraktometeraufnahmen zeigen statt scharfer Intensitätsmaxima wie bei Kristallen eine für amorphe Strukturen charakteristische breite Intensitätsverteilung. Ein zusätzlicher Test für das Vorliegen der amorphen Phase ist die Temperaturabhängigkeit des elektrischen Widerstands, dessen Temperaturkoeffizient eine empfindliche Sonde für die Nahordnung ist. Darüber hinaus ist die Zusammensetzung der Legierungen mit der Mikrosonde analysiert worden. Innerhalb des Meßfehlers (~ 1 at%) stimmen die gemessenen Konzentrationen der einzelnen Konstituenten mit der nominellen Zusammen-

setzung überein, die auch im folgenden immer angegeben wird. Alle Widerstands- und Thermokraftmessungen sind an unbehandelten Proben durchgeführt worden.

§4 Widerstandsmeßanordnung

I. Meßvorschrift

Zur Messung des spezifischen elektrischen Widerstands als Funktion äußerer Parameter (Temperatur, Magnetfeld) sind verschiedene Verfahren entwickelt worden /1/, deren Auswahl und Einsatz immer den experimentellen Anforderungen angepaßt werden muß. Diese Verfahren können im wesentlichen in Gleichstrom- (dc) und Wechselstrom-Verfahren (ac) klassifiziert werden. Ac-Methoden sind dc-Verfahren immer dann vorzuziehen, wenn die Leistungseinkopplung in die zu untersuchende Probe sehr klein gehalten werden muß (wie z. B. bei Tieftemperaturanwendungen) und darüber hinaus eine hohe relative Auflösung gefordert ist. Bei diesem Meßprinzip werden die Ergebnisse nicht durch thermoelektrische dc-Störspannungen verfälscht, die bei dc-Anordnungen insbesondere bei der Messung sehr kleiner Widerstände oder sehr kleiner Widerstandsänderungen eine der Hauptfehlerquellen darstellen. Letztere Bemerkungen treffen auch auf die in dieser Arbeit untersuchten metallischen amorphen Legierungen zu, für deren Untersuchungen folglich eine ac-Meßanordnung eingesetzt wird, die den experimentellen Anforderungen gerecht wird.

Aus der Definitionsgleichung für den Tensor der elektrischen Leitfähigkeit σ bzw. des spezifischen elektrischen Widerstands ρ

$$e_j = \sigma E_j, \quad E_j = \rho e_j \quad (1)$$

ergibt sich für ein homogenes und isotropes Parallelepipet (Abb. 1) eine einfache Möglichkeit zur Messung von ρ . Fließt ein Strom i in Längsrichtung durch dieses Parallelepipet, so ist die Stromdichte durch $e_j = i/A = i/(B D)$ gegeben. Drückt man das zwischen den als punktförmig angenommenen Potentialsonden generierte elektrische Feld E gemäß $E = V/l$ durch die Potentialdifferenz V aus, so folgt für den spezifischen elektrischen Widerstand ρ die einfache Meßvorschrift

$$\rho = \frac{B D}{l} \frac{V}{i} \quad (2)$$

Voraussetzung für die Anwendbarkeit dieser Gleichung sind isotherme Bedingungen, da sonst elektrothermische und thermoelektrische Effekte zu erheblichen Meßfehlern Anlaß geben /1/. Aber auch der Einfluß der Geometrie auf das Endergebnis sollte nicht unterschätzt werden /2, 3/, da Gl. (2) nur dann anwendbar ist, wenn die Stromdichte zwischen den Potentialsonden homogen ist und die Stromlinien parallel zur Längsachse der Probe verlaufen.

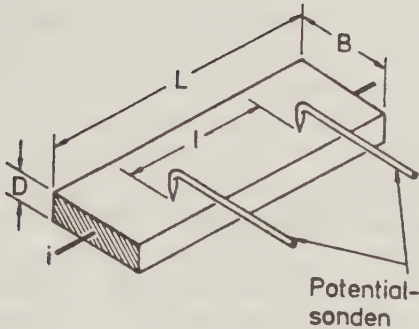


Abb. 1: Schematische Darstellung einer zur Widerstandsmessung in Form eines Parallelepipeds präparierten Probe.

II. Probenpräparation und experimenteller Aufbau

Zur Messung der Temperaturabhängigkeit des spezifischen elektrischen Widerstands werden die Proben in der schon in Abb. 1 skizzierten Vierpolanordnung präpariert, bei der die Übergangs- und Kabelwiderstände praktisch keine Rolle spielen. Typische Abmessungen der Proben sind: $L \approx 30 \text{ mm}$, $B \approx 1 - 2 \text{ mm}$, $D \approx 10 - 30 \text{ }\mu\text{m}$, $l \approx 20 \text{ mm}$. Diese Dimensionierung genügt den Forderungen für eine nahezu ideale Probengeometrie /1-3/ und garantiert Meßergebnisse, die keiner weiteren geometrischen Korrektur unterzogen werden müssen.

Zum Einbau in die Probenhalterung (Abb. 2) werden die zu untersuchenden Proben (B) auf einem gut wärmeleitenden polykristallinen Al_2O_3 -Träger (C, $15 \times 40 \times 1 \text{ mm}^3$) präpariert, auf dem sich für die Zuleitungsdrähte vier Lötstützpunkte (D, E) aus eingebranntem Silber befinden. Die Stromkontakte werden mit Indium ($T_m = 156^\circ\text{C}$) gelötet, wobei als Verbindung zwischen Probe und Lötstützpunkt auf der einen Seite die Verlängerung des Zuleitungsdrahtes (HF-Litze) dient, und auf der anderen Seite ein Bündel von sechs $25 \text{ }\mu\text{m}$ dicken Golddrähten. Durch die sehr weichen Golddrähte können die Unterschiede im thermischen Ausdehnungskoeffizienten von Träger und Probe abgefangen werden, so daß die Messung nicht von aufgeprägten mechanischen Verspannungen verfälscht wird. Für die Potentialsonden werden zwei dünne Golddrähte ($\phi = 25 \text{ }\mu\text{m}$) auf die Probenoberfläche gelötet. Dabei ist darauf zu achten, daß zur Realisierung möglichst punktförmiger Kontakte die Lötstellen nur unwesentlich größer als der Durchmesser der verwendeten Drähte werden dürfen. Als Lot wird hier eine $\text{Bi}_{45}\text{Cd}_{55}$ -Legierung verwendet, die in dem zugänglichen Temperaturbereich ($T \geq 1.5 \text{ K}$) nicht supraleitend wird und außerdem einen sehr niedrigen Schmelzpunkt ($T_m = 140^\circ\text{C}$) besitzt. Da die

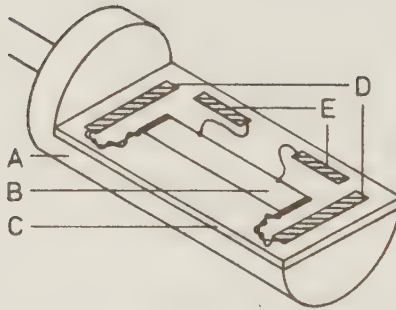


Abb. 2: Schematische Darstellung der Probenhalterung: A - bearbeiteter Cu-Zylinder mit kalibrierten Meßwiderständen (Pt- und Ge-Widerstandsthermometer; nicht eingezeichnet), B - Probe, C - polykristalliner Al_2O_3 -Träger, D - Stromkontakte, E - Spannungskontakte.

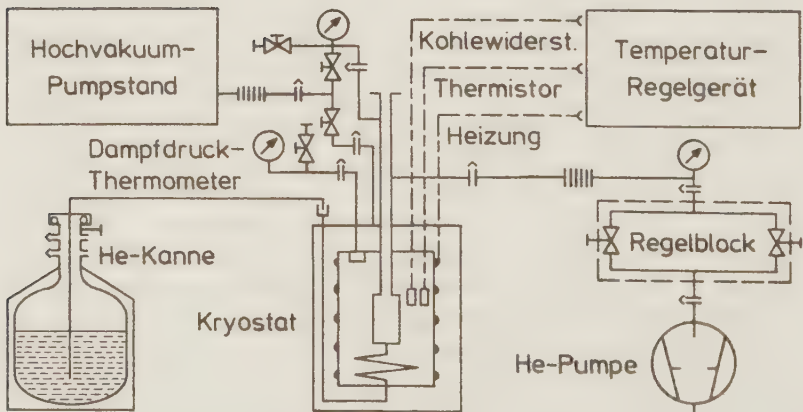


Abb. 3: Schematische Darstellung des betriebsfertigen Tieftemperatursystems.

Proben bei der Präparation zur Vermeidung von Relaxationsvorgängen oder schlimmstenfalls Kristallisation nicht zu stark thermisch belastet werden dürfen, empfiehlt sich beim Löten die Verwendung eines geeigneten Flußmittels zur Unterstützung und Beschleunigung des Lötvorgangs. Hier hat sich ein für Zr-Legierungen entwickeltes Flußmittel (DODUCO, Doflux Nr. 8) bestens bewährt, da sich mit diesem Mittel bei allen untersuchten Proben innerhalb kürzester Zeit störende Oxidschichten entfernen ließen; allerdings müssen wegen der Aggressivität alle Flußmittelrückstände peinlich genau wieder von der Probe entfernt werden. Der in dieser Weise präparierte Probenträger (C) wird mit Apiezon N auf der Probenhalterung (A) fixiert, und die Anschlußdrähte für Strom und Spannung werden mit den in der Probenhalterung vorgesehenen Lötstützpunkten verbunden.

Die Probenhalterung (A) besteht aus einem 7 cm langen bearbeiteten Cu-Zylinder ($\phi = 2$ cm) mit eingefrästen Aussparungen für die zur Temperaturmessung eingesetzten Widerstände. Auf der der Probe gegenüberliegenden Seite ist eine Kapton-Folie mit Cu-Bahnen geklebt, die als Lötstützpunkte für die Zuleitungsdrähte zur Probe und zu den Meßwiderständen dienen. Zum Schutz der eingebauten Probe kann eine Cu-Hülse über den Zylinder geschoben werden.

Zur Messung der Temperaturabhängigkeit des spezifischen elektrischen Widerstands wird die gesamte Probenhalterung in einem kommerziellen Ganzmetall-Kryostaten (Cryovac, KONTI-IT) untergebracht, der die Eigenschaften eines Verdampfer- und eines Badkryostaten in idealer Weise in sich vereinigt. Für Temperaturen oberhalb von 4.2 K wird der Probenkopf direkt über das im Wärmetauscher verdampfte He-Gas gekühlt, während zur Einstellung von Temperaturen im Bereich $1.5 \leq T \leq 4.2$ K der Probenraum mit flüssigem He geflutet und der Dampfdruck des He-Bades mit einer Kühlmittelpumpe erniedrigt wird. Das betriebsfertige Tieftemperatursystem ist in Abb. 3 schematisch dargestellt.

Für die Messung der Temperaturabhängigkeit von ρ wird eine ac-Kompensationsmeßanordnung eingesetzt, die gegenüber der direkten Messung von ρ ein höheres relatives Auflösungsvermögen ermöglicht. Die einzelnen Komponenten dieser Anordnung sind dem Blockschaltbild der Meßelektronik (Abb. 4) zu entnehmen. Der Probenstrom wird von einer Wechselstromquelle (Eigenbau) geliefert, die von einem hochstabilen Festfrequenzoszillator (Eigenbau, Arbeitsfrequenz ~ 183 Hz) gesteuert wird. Diese Steuerspannung stellt zugleich die Referenzspannung für den Lock-In Verstärker (Ithaco, Dynatrac 393) dar. In dem Probenstromkreis be-

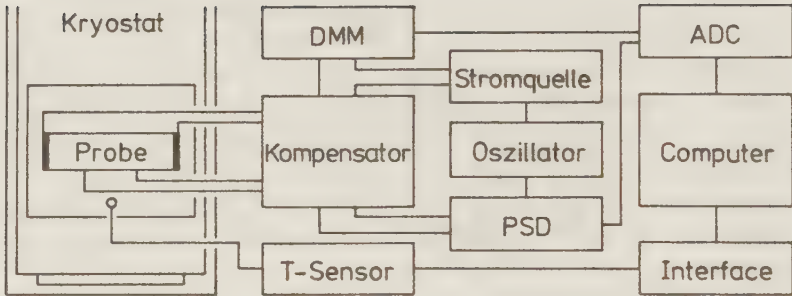


Abb. 4: Blockschaltbild der für die Messung des spezifischen elektrischen Widerstands eingesetzten Nachweiselektronik (DMM = Digitalmultimeter, PSD = Lock-In Verstärker).

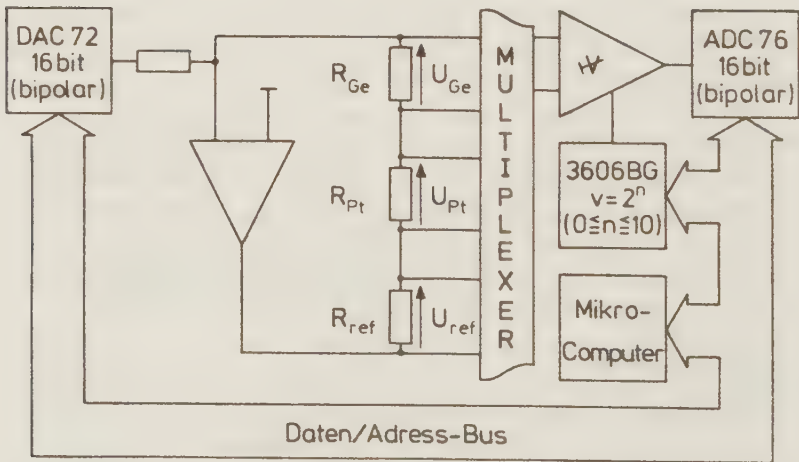


Abb. 5: Schematische Darstellung der für die Temperaturmessung benutzten Interface-Komponenten.

findet sich ein aus passiven Bauelementen aufgebauter Kompensator, dem eine in Amplitude und Phase regelbare Wechselspannung entnommen werden kann. Zur Messung des Probenstroms ist ein Digitalmultimeter (Keithley, DMM 177), dessen Analogausgang auf einen Kanal eines programmierbaren Zwei-Kanal A/D-Wandlers (Ithaco, ADC 385) gegeben wird, mit der Probe in Reihe geschaltet. Der zwischen den Spannungsabgriffen der Probe erzeugten Potentialdifferenz wird die dem Kompensator entnommene Kompensationsspannung gegenphasig überlagert und das Differenzsignal von dem als Nullindikator dienenden Lock-In Verstärker nachgewiesen. Eine Änderung des Probenwiderstands R_p um ΔR_p bewirkt eine dazu proportionale Differenzspannung ΔV_p , die über den Analogausgang des Lock-In Verstärkers auf den zweiten Kanal des A/D-Wandlers gegeben wird. Dieser programmierbare A/D-Wandler ist über den IEC-Bus integraler Bestandteil der Digitalseite. Der Probenstrom und damit die eingekoppelte Leistung muß den experimentellen Gegebenheiten angepaßt werden, da eine zu große Joule'sche Wärmeerzeugung in der Probe insbesondere bei tiefen Temperaturen ($T < 100$ K) zu erheblichen Instabilitäten in den Meßbedingungen führen kann. Typische Werte für den aufgeprägten Meßstrom i und des dadurch hervorgerufenen Spannungsabfalls V bei der gewählten Probengeometrie sind $i \leq 10$ mA und $V \approx 10$ mV. Mit der kontinuierlich messenden Wechselstromapparatur ist es möglich, relative Widerstandsänderungen von $\Delta p/p \approx 5 \times 10^{-6}$ bei Widerständen von einigen 100 m Ω aufzulösen. Der gesamte experimentelle Ablauf wird mit einem Kleinrechner (Commodore, CBM 8296) überwacht, der die Aufgaben der on-line Datenverarbeitung und Datensicherung übernimmt.

Die Temperaturmessung erfolgt mit dem modular aufgebauten Interface /4,5/, das über keine eigene Intelligenz verfügt und direkt an den Daten-Adreß-Bus des Rechners angeschlossen ist (Abb. 5). Experimentell wird die Temperaturskala mit einem kalibrierten Pt- ($T > 30$ K) bzw. Ge-Widerstand ($T < 40$ K) realisiert. Zur Messung des Widerstands dieser Temperaturfühler wird ein Verfahren benutzt, bei dem der Strom nicht bekannt sein muß. Die absolute Widerstandsbestimmung wird dabei auf eine Vergleichsmessung mit einem bekannten Referenzwiderstand zurückgeführt, die den Einfluß von Offset-Strömen der Stromquelle, den Kalibrierungsfehler des A/D-Wandlers und thermoelektrische Effekte eliminiert. Durch Messung des Spannungsabfalls an den Widerständen für unterschiedliche Stromrichtungen $+i$ und $-i$ ergibt sich der zu bestimmende Widerstand zu

$$R_x = \frac{U_{x1} - U_{x2}}{U_{ref1} - U_{ref2}} \frac{v_x}{v_{ref}} R_{ref} \quad , \quad (3)$$

wobei der Spannungsabfall U_i in Einheiten des eingesetzten A/D-Wandlers (digits) einzusetzen ist und v_i für den benutzten Verstärkungsfaktor steht. Als Stromquelle dient ein programmierbarer bipolarer 16 bit Stromgeber (BB, DAC 72 COB) mit einer Aussteuerbarkeit von $\pm 200 \mu A$. Während zur Bestimmung von R_{pt} mit einem Meßstrom von $\pm 100 \mu A$ im gesamten Einsatzbereich gearbeitet wird, muß man beim Ge-Widerstand wegen der großen Dynamik von R_{Ge} zur Vermeidung von Selbstaufheizungseffekten die eingekoppelte Leistung dem Absolutwert R_{Ge} in der Weise anpassen, daß der Spannungsabfall U_{Ge} konstant bleibt. Alle anfallenden Spannungen werden zur Erhöhung des Dynamikbereichs über einen 8-Kanal Multiplexer auf einen Instrumentenverstärker (BB, 3606 BG) mit programmierbarem Verstärkungsfaktor $v = 2^n$ ($0 \leq n \leq 10$) gegeben. Diese differentiell vorverstärkten Spannungen werden dann von einem bipolaren 16 bit A/D-Wandler (BB, ADC 76, Konversionszeit $\sim 17 \mu s$) konvertiert und können vom Rechner aus abgefragt werden. Zur Verringerung des statistischen Rauschens wird jede Messung durch ein Maschinenprogramm 256 mal ausgeführt, das Ergebnis aufaddiert und als 16 bit Wert an das Basic-Programm übergeben. Jedes der beschriebenen Module entspricht physikalisch mehreren Speicherplätzen des Rechners, auf die mittels Maschinenprogramm sehr schnell zugegriffen werden kann (typisch einige μs), so daß das dargestellte Meßprinzip zur Widerstandsbestimmung einem niederfrequenten Wechselspannungsmeßverfahren gleichkommt.

III. Fehlerbetrachtung

Das relative Auflösungsvermögen der ac-Kompensationsmeßanordnung wird durch eine Reihe von Faktoren begrenzt. Bei der Spannungsmessung mit Kompensation muß gewährleistet sein, daß das Meßsignal proportional zur Änderung des Probenwiderstands ist. Der Korrekturfaktor, der den Einfluß der Schaltungskomponenten bei der Messung mit Kompensation berücksichtigt, kann zu kleiner als 1 ppm abgeschätzt werden und ist somit vernachlässigbar. Eine Drift der Referenzspannungsquelle und damit auch des Stromgebers ist mit den zur Verfügung stehenden Meßgeräten nicht nachweisbar. Die nutzbare Empfindlichkeit des Meßverstärkers wird durch die thermische Rauschspannung des Quellwiderstands und durch das Eigenrauschen des Verstärkers bestimmt, das von der Anpassung, d. h. von der Meßfrequenz und dem Quellwiderstand abhängt. Der Quellwiderstand ist

bei allen untersuchten Proben im wesentlichen durch den Kabelwiderstand vorgegeben ($\sim 2 - 3 \Omega$). Bei einer Bandbreite von 0.03 Hz und einer Meßfrequenz von 183 Hz ergibt sich für das Meßsystem eine nutzbare Empfindlichkeit von etwa 10 nV, die bei einem typischen unkompensierten Meßsignal von 10 mV eine ideale relative Auflösung $\Delta\rho/\rho$ von 1 ppm erlaubt. Bei einer 99%-igen Kompensation des anstehenden Meßsignals muß das verstärkte, am Analogausgang des Lock-In Verstärkers verbleibende Differenzsignal mit einer Auflösung von 1 in 10^4 digitalisiert werden, um diese ideale Auflösung zu erreichen. Obwohl mit dem eingesetzten Zwei-Kanal A/D-Wandler eine um den Faktor 10 höhere relative Auflösung möglich ist, wird auch bei sorgfältiger Abschirmung und Erdung des Meßsystems die theoretische Auflösung der Anordnung nicht ganz erreicht, da sich z. B. die Einstreuung von Störpegeln über die Masseleitung nie vollständig unterdrücken läßt. Aus den durchgeführten Untersuchungen kann man aber für $\Delta\rho/\rho$ eine Auflösungsgrenze von 5 ppm abschätzen.

Die mit dem experimentellen Aufbau erreichte hohe relative Auflösung kann aber durch systematische Fehler, die sich einer quantitativen Analyse entziehen, deutlich eingeschränkt werden. Auf Grund des im Vergleich zu kristallinen Systemen sehr geringen Temperaturkoeffizienten $\alpha_T = d\ln\rho/dT$ des spezifischen elektrischen Widerstands amorpher Legierungen ist die durch die thermische Ausdehnung verursachte Änderung der Probengeometrie und damit auch der Streueigenschaften während des Abkühlzyklus nicht mehr unbedingt vernachlässigbar.

Eine grobe Abschätzung dieses Effekts ist unter der Annahme möglich, daß sich bei variabler Probengeometrie die Streueigenschaften des betrachteten Systems nicht ändern. Das Verhältnis der bei verschiedenen Temperaturen gemessenen Widerstände $R(T)/R(T_0)$ muß dann gemäß

$$\frac{\rho(T)}{\rho(T_0)} = \frac{R(T)}{R(T_0)} \{1 + \beta(T)\} \quad (4)$$

mit einer temperaturabhängigen Korrekturfunktion $K(T) = 1 + \beta(T)$ multipliziert werden, um auf das korrekte Verhältnis der spezifischen elektrischen Widerstände bei diesen Temperaturen zu schließen. Die Funktion $\beta(T)$ ist hier über die Beziehung

$$\beta(T) = \int_{T_0}^T \alpha_1(T) dT \quad (5)$$

mit dem linearen thermischen Ausdehnungskoeffizienten $\alpha_1 = (d\ln(l)/dT)_\rho$ verknüpft. Entwickelt man α_1 an der Stelle T_0 in eine Taylorreihe und

beschränkt sich auf den Term niedrigster Ordnung, so hängt $K(T) \approx 1 + \alpha_1(T_0)(T-T_0)$ linear von der Differenz der Vergleichstemperaturen ab. Setzt man für den linearen thermischen Ausdehnungskoeffizienten amorpher Systeme typische Werte ein ($\alpha_1 \approx 1 \times 10^{-5} \text{ K}^{-1}$), so ergibt sich bei einer Temperaturdifferenz von 273 K ($T_0 = 273 \text{ K}$, $T = 0 \text{ K}$) ein Korrekturfaktor von $K(0) = 0.9973$, d. h. eine Korrektur des gemessenen Widerstandsverhältnisses von 0.27%. Die experimentelle Funktion des spezifischen elektrischen Widerstands wird damit systematisch verzerrt.

Eine Behandlung der mit der Änderung der Probengeometrie einhergehenden Änderung der Gitterdynamik und der Streueigenschaften ist nur in bezug auf ein konkretes Transportmodell möglich. Von den verschiedenen üblicherweise vernachlässigten Einflüssen auf das Transportgeschehen seien hier nur zwei genannt: die Variation der Debye-Temperatur als Folge der thermischen Ausdehnung und das endliche Energie-Intervall ($\sim k_B T$), in dem die Fermi-Verteilungsfunktion vom Wert eins effektiv auf null abfällt.

In diesem Sinne handelt es sich bei allen in dieser Arbeit angegebenen Widerstandsdaten um den scheinbaren spezifischen elektrischen Widerstand, da sich alle Messungen auf die Probendimensionen bei einer Bezugstemperatur T_0 beziehen.

Die hohe Empfindlichkeit bei Messungen mit Kompensation kann lediglich zur Bestimmung relativer Widerstandsänderungen ausgenutzt werden. Bei der Absolutwertbestimmung des spezifischen elektrischen Widerstands hängt die Genauigkeit wesentlich von der Unsicherheit des Geometriefaktors ab (Gl. (2)), da der Fehler der elektrischen Größen V und i kleiner als 0.1% gehalten werden kann. Die größte Fehlerquelle bei der Messung des Geometriefaktors ist die Dicke D der Proben, die wegen der großen Oberflächenrauigkeit am schlechtesten definiert ist. Ein Ausweg bietet sich hier über die Ermittlung des Probenquerschnitts mit Hilfe von Dichtedaten. In der dann zur Berechnung von ρ heranzuziehenden Formel

$$\rho = \frac{V}{i} \frac{M}{\Delta L 1} \quad (6)$$

stehen nur noch Größen, die man bis auf 1% genau und besser messen kann (M = Masse, Δ = Dichte). Die Dichten der in dieser Arbeit untersuchten metallischen Gläser sind mit der von Aso et al. /6/ für das Fünfstoffsystem $\text{Fe}_x\text{Co}_y\text{Ni}_z\text{Si}_p\text{B}_q$ angegebenen Funktion

$$\Delta(x, y, z, p, q) = 0.0809x + 0.091y + 0.0939z + 0.0306p + 0.0445q \quad (7)$$

$$(x + y + z + p + q = 1)$$

berechnet worden, deren Genauigkeit mit besser als 1% angenommen werden kann.

Bei der benutzten Anordnung zur Messung des Widerstands der Temperaturfühler wird die Meßgenauigkeit durch den Linearitätsfehler des Vorverstärkers, durch Fehler in den Verstärkungsfaktoren und durch die digitale Auflösung bestimmt. Der Linearitätsfehler der analogen Komponente ist hier von untergeordneter Bedeutung, da er vom Hersteller mit $< 5 \times 10^{-5}$ spezifiziert ist. Da außerdem Fehler und Temperaturkoeffizient des Referenzwiderstands mit < 1 ppm bzw. < 0.2 ppm/°C angegeben sind, hängt die Genauigkeit in der Bestimmung von R_x (Gl. (3)) nur von der digitalen Auflösung und dem Verstärkungsfaktor ab. Durch sorgfältige Abschirmung und Erdung der Meßkreise kann die maximale Auflösung des A/D-Wandlers bei bipolarer Arbeitsweise von 1 in 2^{15} bits erreicht werden. Da bei quasi konstantem Spannungsabfall an R_{Ge} gearbeitet wird, liegt der Verstärkungsfaktor v_{Ge} fest. U_{ref} kann dann Werte von 10 V bis < 9.6 mV annehmen. Die ungünstigste Auflösung für die Spannung U_{ref} ist bei der halben Aussteuerung des Meßbereichs erreicht, da bei Unterschreitung dieses Pegels die Verstärkung erhöht wird. Unter Berücksichtigung des Rauschens der Stromquelle von ± 2 bits ergibt sich der Gesamtfehler $\Delta R_{Ge}/R_{Ge}$ bei der Messung von R_{Ge} zu maximal 0.04%, wobei der Widerstand selbst über drei Größenordnungen variieren kann. Zur Bestimmung des Widerstands R_{Pt} wird der Verstärkungsfaktor v_{ref} fest vorgegeben und v_{Pt} dem Meßsignal U_{Pt} zur Erzielung maximaler Auflösung angepaßt. Der Gesamtfehler $\Delta R_{Pt}/R_{Pt}$ kann hier für den ungünstigsten Fall zu 0.08% abgeschätzt werden. Die experimentelle Temperaturauflösung ist somit besser als die für beide Widerstände angegebene Absolutgenauigkeit der Kalibrierung ($\Delta T_{Ge} = \pm 10$ mK für $T < 30$ K, $\Delta T_{Pt} = \pm 30$ mK für $T > 30$ K).

§5 Ein differentiellles ac-Verfahren zur Messung der Thermokraft

I. Einleitung

Die Bestimmung der Thermokraft von Metallen mit konventionellen differentiellen dc-Meßanordnungen ist mit einer Reihe von experimentellen Schwierigkeiten verbunden. Neben dem zeitaufwendigen Meßprozeß bei konstanten Temperaturen, der natürlicherweise die Anzahl der aufgezeichneten Datenpunkte auf wenige beschränkt, können thermoelektrische dc-Störspannungen in den Meßkreisen die Genauigkeit des Experiments gravierend einschränken. Angesichts dieser Schwierigkeiten haben Freeman und Bass /1/ und Hellenthal und Ostholt /2/ in Pionierarbeiten das Konzept eines differentiellen ac-Systems zur Messung der Thermokraft von Metallen initiiert, indem sie die auf variabler Temperatur gehaltene Lötstelle mit dem zerhackten Licht einer fokussierten Wolfram- bzw. Halogen-Lampe periodisch beheizt haben. Jedoch hat keiner der oben genannten Autoren den Versuch unternommen, dieses ac-System für Messungen unterhalb von Raumtemperatur einzusetzen. Der Tieftemperaturbereich ist später von Korn und Mürer /3/ erschlossen worden, die die Strahlungsquelle durch zwei Widerstandsheizungen ersetzt haben, mit denen beide Thermoelement-Lötstellen alternierend beheizt werden. Beide genannten Meßtechniken erfordern die detaillierte Kenntnis der thermischen Antwort der Meßkreise, die entweder experimentell ermittelt werden muß /3/, oder deren Einfluß auf das Meßergebnis durch einen geeigneten experimentellen Aufbau /2/ vernachlässigbar klein gehalten werden muß.

In diesem Abschnitt wird der Aufbau eines modifizierten differentiellen ac-Systems zur Messung der Thermokraft von Metallen vorgestellt, der auf der resistiven periodischen Beheizung einer Thermoelement-Lötstelle basiert. Bei diesem Verfahren, das in seinen wesentlichen Merkmalen den zitierten Verfahren entspricht, wird die Notwendigkeit einer Korrektur der Meßsignale auf Grund der thermischen Antwort des experimentellen Aufbaus durch eine geeignete Probenanordnung vermieden. Die Analyse der thermischen Antwort einer speziellen Probenanordnung auf einen zeitabhängigen Wärmefluß zeigt den Einfluß thermischer Parameter auf das Endergebnis und liefert die Kriterien für die Ausführung der beheizten Thermoelement-Lötstelle.

II. Meßprinzip

Wenn sich in einem offenen, aus zwei verschiedenen leitenden Materialien a und b bestehenden Thermokreis (Abb. 1a) die beiden Lötstellen auf unterschiedlichen Temperaturen T_1 und $T_2 = T_1 + \Delta T$ befinden, so ist die generierte thermoelektrische Potentialdifferenz $V_{\beta\alpha}$ durch

$$V_{\beta\alpha}(T_1, T_2) = \int_{T_1}^{T_2} S_{b/a}(T) dT = \int_{T_1}^{T_2} (S_a(T) - S_b(T)) dT \quad (1)$$

gegeben /4/, wobei $S_{b/a}$ die Differenz der absoluten Thermokräfte S_a und S_b der Komponenten a und b ist. Es gibt zwei grundsätzliche Verfahren zur Messung der Thermokraft, ein integrales und ein differentielles. Bei dem integralen Verfahren wird die Temperatur T_1 einer Lötstelle konstant gehalten und $V_{\beta\alpha}$ als Funktion von T_2 gemessen. Differentiation nach T_2 ergibt dann

$$S_{b/a}(T_2) = S_a(T_2) - S_b(T_2) = \frac{dV_{\beta\alpha}(T_1, T_2)}{dT_2}, \quad (2)$$

woraus $S_b(T_2)$ ermittelt werden kann, wenn das Metall a ein bekannter thermoelektrischer Standard ist. Bei dem differentiellen Verfahren wird zwischen den beiden Lötstellen des auf der mittleren Temperatur $T_0 = (T_1 + T_2)/2$ befindlichen Thermoelements eine kleine Temperaturdifferenz ΔT aufrechterhalten, die eine kleine Potentialdifferenz $\Delta V_{\beta\alpha}$ verursacht. Entwickelt man $S_{b/a}$ bei der mittleren Temperatur T_0 in eine Taylorreihe und integriert Gl. (1), so erhält man

$$\begin{aligned} \frac{\Delta V_{\beta\alpha}}{\Delta T} &= S_{b/a}(T_0) + \sum_{n=1}^{\infty} \frac{1}{(2n+1)!} \frac{d^{(2n)} S_{b/a}(T)}{dT_0^{(2n)}} \left(\frac{\Delta T}{2}\right)^{2n} \\ &= S_{b/a}(T_0) + \Delta S_{b/a}(T_0). \end{aligned} \quad (3)$$

Um eindeutige Ergebnisse bei der Messung der Thermokraft zu erhalten und nicht die Struktur von $S_{b/a}(T)$ herauszumitteln, muß die Temperaturdifferenz ΔT zwischen den beiden Lötstellen hinreichend klein sein und der Bedingung $\Delta S_{b/a}/S_{b/a} \ll 1$ genügen, die eine stärkere Einschränkung bedeutet als $\Delta T/T_0 \ll 1$.

Bevor die experimentelle Anordnung beschrieben werden soll, ist es instruktiv, die thermische Antwort der beheizten Lötstelle auf einen zeitabhängigen Wärmefluß von einem makroskopischen Standpunkt aus zu untersuchen, d. h. das Relaxationsphänomen des thermischen Systems als

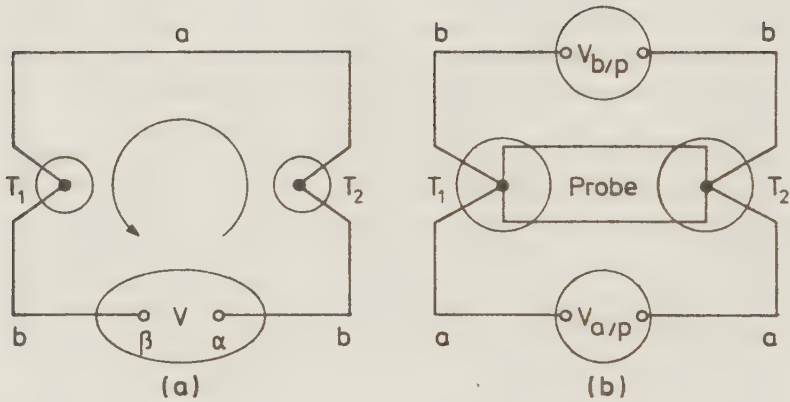


Abb. 1: (a) Offener Thermokreis aus zwei Metallen a und b. Die Kreise deuten die Ausdehnung der isothermen Bereiche an.
(b) Probenanordnung zur Messung der Thermokraft bestehend aus zwei parallel geschalteten offenen Thermokreisen.

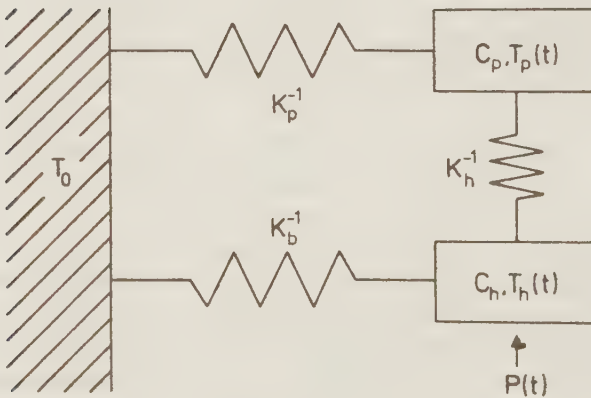


Abb. 2: Wärmeflußmodell für die beheizte Thermoelement-Lötstelle. Das Thermoelement ist über die Wärmewiderstände $1/K_p$ und $1/K_h$ an das Wärmebad bzw. die Heizung angekoppelt, die wiederum über den Wärmewiderstand $1/K_b$ Kontakt zum Wärmebad hat.

Energieaustausch zwischen auf verschiedenen Temperaturen befindlichen Subsystemen zu behandeln. Dies wird als "zusammengefaßtes" Wärmeflußproblem bezeichnet. Abb. 2 zeigt das thermische Ersatzschaltbild für die aktuelle Präparation der beheizten Lötstelle. Nach dieser Abbildung ist eine Lötstelle der Wärmekapazität C_p an einer kleinen Heizung der Wärmekapazität C_h befestigt, die wiederum mit einem Wärmereservoir in Kontakt steht, das eine hinreichend große thermische Masse besitzt, um selbst bei Beheizung der Lötstelle seine Temperatur T_o aufrechtzuerhalten. Die anderen beiden Enden der Thermoelementschenkel sind ebenfalls an das Wärmebad angebunden. Diese Komponenten sind untereinander durch thermische Widerstände $1/K$ verbunden, wobei $1/K_b$ und $1/K_h$ die thermischen Übergangswiderstände zwischen Heizung und Wärmebad bzw. Heizung und Lötstelle sind, und $1/K_p$ der thermische Widerstand des Thermoelements ist. Für das in Abb. 2 dargestellte Modell erhält man nach dem ersten Hauptsatz der Thermodynamik und dem Fourier'schen Gesetz folgende Gleichungen:

$$C_p \frac{dT_p(t)}{dt} + K_p(T_p(t) - T_o) + K_h(T_p(t) - T_h(t)) = 0 \quad , \quad (4)$$

$$C_h \frac{dT_h(t)}{dt} + K_h(T_h(t) - T_p(t)) + K_b(T_h(t) - T_o) = P(t) \quad , \quad (5)$$

mit $P(t)$ als der durch die Heizung zugeführten Heizleistung. Führt man dem System eine periodische Heizleistung $P(t) = P_o \cos^2 \omega t$ zu, so ist die stationäre Lösung dieses Systems gekoppelter Differentialgleichungen durch

$$T_p(t) = T_o + \Delta T_{dc} + \Delta T_{ac} \sin(2\omega t + \varphi) \quad (6)$$

gegeben mit

$$\Delta T_{dc} = \frac{1}{2} \frac{P_o}{K_p} \frac{1}{1 + K_b/K_p + K_b/K_h} \quad (7)$$

und

$$\Delta T_{ac} = \frac{\Delta T_{dc} (1 + K_b/K_p + K_b/K_h)}{\left\{ 4\omega^2 \left[\tau_h + \tau_p (1 + C_h/C_p + K_b/K_h) \right]^2 + (1 + K_b/K_p + K_b/K_h - 4\tau_p \tau_h \omega^2)^2 \right\}^{1/2}} \quad , \quad (8)$$

wobei $\tau = C/K$ und φ ein hier nicht interessierender Phasenwinkel ist. Der Ausdruck für T_p besteht aus zwei Termen, einem konstanten Term, der nur von den thermischen Parametern des Systems abhängt, und einem zeitabhängigen (oszillierenden) Term mit einer frequenzabhängigen Amplitu-

de. Daraus ergeben sich im wesentlichen zwei Forderungen für die Optimierung der experimentellen Anordnung: (i) die eingekoppelte Heizleistung sollte so klein gehalten werden, daß die Verschiebung ΔT_{dc} der Bezugstemperatur T_0 nicht mit gemessen werden muß, und (ii) sollten die Bedingungen $\omega\tau_h, \omega\tau_p \ll 1$ realisiert sein, um eine möglichst große ac-Amplitude ΔT_{ac} zu erhalten. Da die Relaxationszeiten τ_h und τ_p nicht immer beliebig klein gehalten werden können, sollte offenkundig die Anregungsfrequenz für das thermische System möglichst niedrig gewählt werden.

In der vorangegangenen Diskussion des Wärmeleitungsproblems ist implizit eine unendliche thermische Leitfähigkeit innerhalb der beheizten Lötstelle angenommen worden, eine Bedingung, die experimentell durch eine geeignete Präparation der Lötstelle gewährleistet werden muß. Dies ist ein wohlbekanntes Problem bei der Temperaturbestimmung an Oberflächen mittels Thermoelementen, da jeglicher Wärmefluß durch das Thermoelement zu Temperaturgradienten über den legierten Bereich der Lötstelle Anlaß gibt. In bezug auf das vorliegende Problem hat dies sicherlich Beiträge des legierten Bereichs der Thermoelement-Lötstelle zu den gemessenen Thermospannungen zur Folge, die nicht korrigiert werden können. Da Kopp et al. /5/ eine detaillierte Analyse des zur Debatte stehenden Wärmefluß-Problems durchgeführt haben, kann man sich an dieser Stelle auf eine kurze Zusammenfassung der wesentlichen Ergebnisse beschränken. Um eine homogene Temperaturverteilung innerhalb der beheizten Lötstelle des Thermoelements zu gewährleisten, muß zunächst einmal die Dicke der beheizten Lötstelle klein gegen die thermische Diffusionslänge $\lambda = \sqrt{K/(T C \pi f)}$ /6/ gehalten werden, die den Dämpfungsfaktor für die Temperaturwelle repräsentiert. T steht hier für die Dichte und K und C bezeichnen wieder die thermische Leitfähigkeit bzw. die spezifische Wärmekapazität. Auch hier erweist es sich als vorteilhaft, zur Anregung des thermischen Systems niedrige Frequenzen f zu verwenden. Wie schon oben angedeutet wurde, führt jeglicher Wärmefluß durch die Thermodrähte zu einem Temperaturabfall über der Lötstelle, der von der Wärmeleitung der Drähte und dem thermischen Übergangswiderstand zwischen Heizung und Drähten abhängt. Nach den Rechnungen von Kopp et al. /5/ bestehen die notwendigen experimentellen Vorkehrungen zur Minimierung dieser systematischen Fehlerquelle darin, sowohl die freie Länge L der Thermodrähte zwischen der beheizten Lötstelle und der Referenzstelle (die sich auf der Temperatur des Wärmebades befindet), als auch die Länge l , auf der die Drähte an die Heizung angekoppelt sind, groß gegen

die "charakteristische" Länge $\Lambda = \sqrt{(K_W/K_B)(At/s)}$ zu halten. K_W (K_B) ist hier die thermische Leitfähigkeit des Drahtes (Wärmeübergangs zwischen Heizung und Draht), A der Querschnitt des Drahtes, und t und s die Dicke und Breite des Wärmeübergangs. Offensichtlich muß die Ausdehnung der Lötstelle ebenfalls klein gegen die Ankopplungslänge l sein.

Abb. 1b zeigt die für die Messung der Thermokraft verwendete Anordnung. Die Meßanordnung besteht aus zwei parallel geschalteten Thermoelementen a/p und b/p , deren gemeinsamer Schenkel von der zu untersuchenden Probe gebildet wird. Die Anwendung von Gl. (3) auf beide Thermokreise führt zu

$$S_p = S_a - \frac{V_{a/p}}{V_{b/p} - V_{a/p}} S_{a/b} \quad (9)$$

für die absolute Thermokraft der Probe. Die Bestimmung von S_p erfordert die Kenntnis der absoluten Thermokraft zweier Referenzmaterialien S_a und S_b (oder S_a und $S_{a/b}$).

III. Experimenteller Aufbau

Der Probenträger (Abb. 3) besteht aus einer rechteckigen Cu-Platte, die auf ein thermisches Reservoir (A; halbiertes Cu-Zylinder) geschraubt wird, das kalibrierte Pt- bzw. Ge-Widerstandsthermometer enthält. Auf die Oberfläche der Cu-Platte ist zur elektrischen Isolierung und als thermischer Kurzschluß Zigarettenpapier mit Lack (GE 7031) aufgeklebt. Das Heizelement (E; Dehnungsmeßstreifen mit einer effektiven Heizfläche von $8 \times 8 \text{ mm}^2$) und eine Kapton-Folie (C) mit Cu-Bahnen, die als Lötstützpunkte dienen, werden ebenfalls mit Isolier-Lack in einem Abstand von etwa 30 mm zueinander auf dem Zigarettenpapier aufgebracht. Zwischen Heizung und Kapton-Folie wird die etwa 40 mm lange Probe (D) zur thermischen Ankopplung mit etwas Apiezon N auf dem Probenträger fixiert. Für die temperaturabhängigen Messungen der Thermokraft wird die gesamte Probenhalterung in einem Verdampfer-Kryostat (Leybold-Heraeus, VNK3-300) mit einem Innendurchmesser von etwa 20 mm und einer Wärmetauscherlänge von 75 mm untergebracht. Durch Regelung des Kältemitteldurchsatzes (He) kann die Temperatur des Probenraumes kontinuierlich zwischen $T = 300 \text{ K}$ und $T = 4.2 \text{ K}$ variiert werden.

Bevor die Thermoelemente (Chromel, Konstantan) auf die Probenoberfläche gelötet werden, muß man die Enden der runden Drähte (0.1 mm Durchmesser) auf ein rechteckiges Profil abschleifen, dessen Dicke nicht größer sein sollte als die der zu messenden Probe ($\sim 20 \mu\text{m}$). Wie

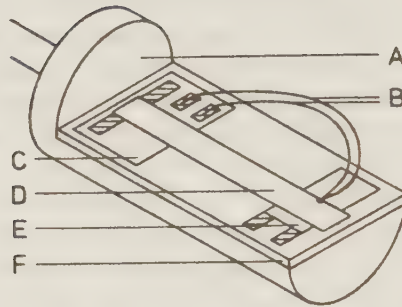


Abb. 3: Schematische Darstellung der Probenhalterung: A - bearbeiteter Cu-Zylinder (der die kalibrierten Pt- und Ge-Widerstandsthermometer enthält), B - Thermodrähte (Chromel, Konstantan), C - Kapton-Folie mit der Referenzstelle (schraffiert), D - Probe, E - Heizelement (Dehnungsmeßstreifen), F - Al_2O_3 -Träger.

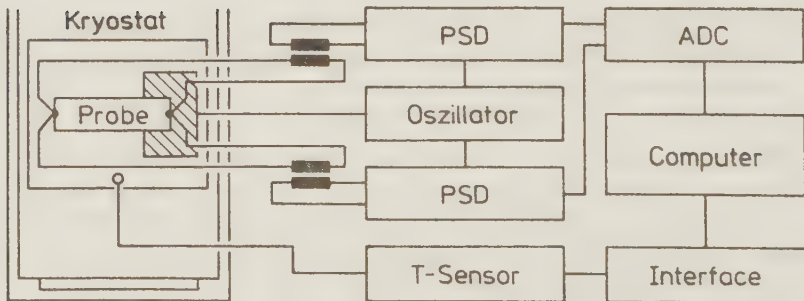


Abb. 4: Blockschaltbild der für das differentielle ac-Verfahren zur Bestimmung der Thermokraft eingesetzten Meßelektronik (PSD = Phasenempfindlicher Gleichrichter). Das Heizelement (Dehnungsmeßstreifen) für eine Lötstelle ist durch die schraffierte Fläche angedeutet.

im vorangehenden Abschnitt erläutert wurde, ist nur eine hinreichend geringe Dicke der Drähte eine Garantie dafür, daß der Temperaturabfall über den Querschnitt nur ein Bruchteil der gesamten Temperaturamplitude ΔT_{ac} beträgt. Die abgeschliffenen Drahtenden werden dann mit einem niedrig schmelzenden Lot (Indium) nebeneinander auf die Probenoberfläche gelötet, wobei darauf zu achten ist, daß die Ausdehnung der Lötstelle möglichst nicht die Breite und die Dicke der Drahtenden übersteigt. Eine gelötete Verbindung gewährleistet nicht nur guten thermischen, sondern auch rein ohm'schen Kontakt mit der Probe und somit ein Probensignal, das nicht durch kapazitive Effekte verfälscht wird. Gegenüber punktgeschweißten Kontakten hat die beschriebene Präparation den Vorteil, daß bei vorsichtiger Arbeitsweise die thermische Belastung der amorphen Proben sehr gering gehalten und strukturelle Relaxation oder schlimmstenfalls Kristallisation vermieden werden kann. Der Probenteil mit der zu beheizenden Lötstelle wird dann in der Weise mit Isolierlack auf die Oberfläche des als Heizung dienenden Dehnungsmeßstreifens geklebt, daß noch einige Millimeter der Thermodrähte thermisch an das Heizelement angekoppelt werden können. Das andere Ende der Probe und der Thermodrähte wird auf die Cu-Bahnen der Kapton-Folie (C) gelötet, die wegen der guten thermischen Anbindung an die Probenhalterung die für die Referenzstelle notwendige Temperaturhomogenität aufweist. Um den Quellwiderstand der Meßkreise möglichst gering zu halten, werden die beiden Thermokreise von der Referenzstelle aus mit abgeschirmten twin-coax Kabeln zu den Meßgeräten weitergeführt.

Bevor auf die zur Messung der Thermokraft eingesetzte Meßelektronik eingegangen wird, soll zunächst eine Abschätzung der relevanten thermischen Parameter durchgeführt werden, um zu zeigen, daß die beschriebene Probenpräparation den im vorigen Abschnitt diskutierten Anforderungen an das thermische System genügt. Bei einer typischen Arbeitsfrequenz von 10 Hz beträgt die thermische Diffusionslänge von Chromel und Konstantan bei Raumtemperatur etwa $\lambda \approx 250 \mu\text{m}$ /6/ und ist somit mindestens um den Faktor zehn größer als die Dicke der abgeschliffenen Thermodrähte (für die thermische Diffusionslänge der amorphen Proben kann angenommen werden, daß sie von der gleichen Größenordnung ist wie die der Thermodrähte). Da $\lambda_{In}(300\text{K}) \approx 1200 \mu\text{m}$ beträgt, ist die Einbettung der Thermodrähte in Indium einer homogenen Temperaturverteilung innerhalb der Lötstelle förderlich; insbesondere steigt λ_{In} bei tiefen Temperaturen um den Faktor 10^3 drastisch an, während die thermische Diffusionslänge von Chromel und Konstantan nahezu konstant bleibt /6/.

Nach Maßgabe experimenteller Daten für die thermische Leitfähigkeit des Isolier-Lacks /7/ kann die charakteristische Länge zu $\lambda \lesssim 0.5 \text{ mm}$ abgeschätzt werden, was klein gegen die Ankopplungslänge l ($\sim 6 \text{ mm}$) der Thermodrähte ist.

Durch periodische Beheizung der "warmen" Lötstelle mittels eines Dehnungsmeßstreifens wird über die Probe ein oszillierender Temperaturabfall ΔT_{ac} ($\sim 5 - 50 \text{ mK}$) erzeugt. Die Verwendung eines Dehnungsmeßstreifens vereinigt in sich mehrere Vorteile wie einen nahezu temperaturunabhängigen Widerstand von $\sim 120 \Omega$ und wegen der geringen Masse und der damit verbundenen kleinen Wärmekapazität ein schnelles thermisches Ansprechverhalten, das Anregungsfrequenzen bis zu $f \approx 30 \text{ Hz}$ erlaubt. Wie dem in Abb. 4 dargestellten Blockschaltbild der Meßelektronik entnommen werden kann, wird der durch den Dehnungsmeßstreifen fließende Wechselstrom von einem Oszillator geliefert, der auch das Referenzsignal für die Lock-In Verstärker (PSD) bereitstellt. Die Dissipation von $\sim 80 \text{ mW}$ ($< 10 \text{ mW}$) in der Widerstandsheizung bei $T = 300 \text{ K}$ (4 K) führt zu Temperaturoszillationen ΔT_{ac} der "warmen" Lötstelle von $\sim 5 \text{ mK}$ ($\lesssim 40 \text{ mK}$) mit zugehörigen thermoelektrischen Spannungen in der Größenordnung von $100 - 200 \text{ nV}$. Bei dieser Wahl der experimentellen Randbedingungen ist der unvermeidliche Gleichanteil ΔT_{dc} der Temperaturerhöhung der beheizten Lötstelle im gesamten untersuchten Temperaturbereich kleiner als 100 mK , so daß keine Korrektur für die Offset-Temperatur ΔT_{dc} erforderlich ist. Die in den parallel geschalteten Thermokreisen generierten Wechselthermospannungen werden auf die Eingänge zweier low-noise FET Vorverstärker mit Eingangstransformator (Ithaco, Modell 165; Verstärkungsfaktor 60 dB) gegeben und phasenempfindlich von zwei im $2f$ -Modus arbeitenden Vektor Lock-In Verstärkern (Ithaco, Dynatrac 393) nachgewiesen. Die Verwendung der Transformator-Vorverstärker hat den Vorteil, daß (i) die Quellimpedanz (typisch 5Ω Quellwiderstand), die im wesentlichen durch den Widerstand der Thermodrähte ($\sim 40 \text{ mm}$ lang) und dem Probenwiderstand bestimmt wird, an die Eingangsimpedanz der Lock-In Verstärker angepaßt und somit das Signal/Rauschverhältnis beträchtlich erhöht wird, und (ii) die beiden Meßkreise galvanisch voneinander entkoppelt und daraus resultierend Mitkopplungsprobleme vermieden werden. Aus dem Frequenzgang der Vorverstärker ergibt sich für einen Quellwiderstand von 5Ω eine untere Meßfrequenz von $f = 7 \text{ Hz}$ ($\hat{=} 3.5 \text{ Hz}$ Anregungsfrequenz).

Die Aufgaben der on-line Datenaufzeichnung und Berechnung der Temperatur (siehe §4 und /8/) und der Thermokraft (siehe Abschnitt IV) wer-

den wieder von einem Personal Computer (Commodore, CBM 8296) übernommen. Beide von den Lock-In Verstärkern gleichgerichteten Meßsignale werden von einem Zwei-Kanal Integrator (Ithaco, ADC 385) parallel mit einer Auflösung von 1 in 10^5 digitalisiert und können über den IEC-Bus vom Rechner aus abgefragt werden. Durch den großen Dynamikbereich des ADC's von 100 dB kann der Dynamikumfang der Meßverstärker von typisch 80 - 100 dB voll ausgenutzt werden.

IV. Experimentelle Auflösung

Da das beschriebene differentielle Meßverfahren die genaue Kenntnis der absoluten Thermokraft zweier thermoelektrischer Standardmaterialien erfordert, verlangt die Eichung der Bezugsthermoelemente besondere Aufmerksamkeit. Mit Hilfe des integralen Meßverfahrens (Gl. (1)) und unter Verwendung von Roberts neuer Thermoelektrizitätsskala /9/ werden die Referenzelemente (Chromel, Konstantan) gegen reines Blei (99.999%) geeicht. Die Eichung wird bei statischen Temperaturgradienten in einem He Badkryostaten vorgenommen, wobei die Bezugstemperatur die Temperatur des flüssigen Heliums ist und die Temperatur der variablen Lötstelle mit einem kalibrierten Pt- ($T > 30$ K) bzw. Ge-Widerstandsthermometer ($T < 40$ K) ermittelt wird. Die durch die angelegten Temperaturdifferenzen in den Meßkreisen generierten Potentialdifferenzen werden mit einem Nanovoltmeter (Keithley, Modell 180) nachgewiesen. Um den Anteil der in den Meßkreisen auftretenden Störspannungen zufällig zu verteilen, erfolgt die Datenerfassung in der Weise, daß man aus den teilweise redundanten Informationen über die Meßobjekte Vorteile ziehen kann, da wegen des gemeinsamen Schenkels drei verschiedene Thermoelement-Kombinationen (Chromel/Pb, Konstantan/Pb, Chromel/Konstantan) gemessen werden können /10/. Die algebraische Kombination der gemessenen Spannungen erlaubt zwei weitere unabhängige Bestimmungen der gewünschten Thermospannung, die schließlich durch eine gemäß der Anzahl der involvierten Messungen gewichteten Summe von drei Thermoelement-Spannungen gegeben ist.

Der nächste Schritt besteht darin, die beste analytische Darstellung für die justierten Daten zu finden. Um einen kontinuierlichen Zusammenhang $S = f(T)$ für jedes Referenzelement zu erhalten, muß zunächst der Blei-Anteil $V_{Pb}(T)$ /9/ von den ermittelten Thermospannungen subtrahiert werden. Dann werden die verbleibenden Thermospannungsdaten gewöhnlich durch eine Linearkombination orthogonaler Polynome in der L_2 -Norm approximiert. Differentiation dieser Fitfunktion nach der Temperatur ergibt die gesuchte analytische Darstellung für die absolute Thermokraft

der beiden Referenzelemente. Ein gravierender Nachteil dieses Verfahrens ist das Fehlen eines eindeutigen Kriteriums für die Beurteilung der Genauigkeit der bestimmten Ableitung, da der Polynomgrad auf der einen Seite groß genug gewählt werden sollte, um dV/dT ohne Verlust an Genauigkeit darstellen zu können, und auf der anderen Seite klein genug, um mathematische Oszillationen zu vermeiden. Ein besserer Weg zur numerischen Berechnung der Ableitung experimenteller Daten ist der der direkten Anpassung von $S(T) = dV(T)/dT$ gemäß //1/

$$\int_a^b \left\{ \frac{dV(T)}{dT} - \sum_i c_i f_i(T) \right\}^2 dT = \min, \quad (10)$$

wobei die $f_i(T)$ einen Satz linear unabhängiger orthonormalen Funktionen in (a,b) bilden. Die Entwicklungskoeffizienten c_i sind durch

$$c_i = \frac{V(T)f_i(T)}{a} \Big|_a^b - \int_a^b \frac{df_i(T)}{dT} V(T) dT \quad (11)$$

gegeben. Das Integral auf der rechten Seite kann unter Benutzung der justierten experimentellen $V_i(T_i)$ -Daten mit üblichen Methoden der numerischen Integration hinreichend genau berechnet werden. Der Vorteil dieses Verfahrens liegt darin, daß es nicht so leicht zu mathematischen Oszillationen neigt und die Standardabweichung der Ableitung leicht aus dem Meßfehler ermittelt werden kann (der Fehler bei der numerischen Integration kann vernachlässigbar klein gegen den Meßfehler gehalten werden). Bei dieser Art der Auswertung hat es sich als zweckmäßig erwiesen, ein kleines Teilintervall (a,b) über die experimentellen Kurven zu verschieben und die Ableitung dV/dT nur an Punkten minimaler Standardabweichung zu berechnen. Die auf diese Weise ermittelten Datensätze für dV_i/dT werden dann durch eine Linearkombination orthogonaler Polynome unter Berücksichtigung der Nebenbedingung $S_{a/b} = S_b - S_a$ in der L_2 -Norm approximiert. Die beschriebene Datenanalyse führt zu Standardabweichungen für die absoluten Thermokräfte von Chromel und Konstantan von 70 bzw. 80 nV/K. Systematische Fehler auf Grund von Inhomogenitäten in den Thermodrähten, Linearitätsfehlern und Temperaturdrift der Meßgeräte während der Eichprozedur können kleiner als 100 nV/K veranschlagt werden.

Der Fehler der ac-Anordnung setzt sich aus der Eichgenauigkeit der Referenzdrähte und dem Rauschen des Meßsystems zusammen (siehe Gl.(9)). Die maximale Eingangsempfindlichkeit beider Meßkreise beträgt 100 pV FS, die aber nur durch sorgfältige Abschirmung des Experiments und

vollständiger Unterdrückung der Netzfrequenz und ihrer Harmonischen erreicht werden kann. Mit den in Abschnitt III beschriebenen experimentellen Randbedingungen, die den Anforderungen der durchgeführten Experimente (siehe Abschnitt V) angepaßt worden sind, ist der Rauschpegel bei einer Bandbreite von 0.03 Hz kleiner als 0.5 nV. Das Spannungsverhältnis $V_{b/p}/V_{a/p}$ kann mit einer Genauigkeit von besser als 10^{-3} bestimmt werden, was zu einer Streuung der gemessenen Thermokraft Daten von kleiner als 20 nV/K Anlaß gibt. Daher wird der absolute Fehler der mit dem ac-Verfahren gemessenen Thermokraft im wesentlichen durch die Eichgenauigkeit der Referenzdrähte bestimmt.

Neben den diskutierten Fehlerquellen gibt es noch solche, die sich einer quantitativen Analyse entziehen und überprüft werden müssen. Die einfachste Vorgehensweise zur Lokalisierung versteckter Fehler und zur Überprüfung der Genauigkeit ist die Messung des Quellwiderstands beider Thermokreise zur Fixierung der durch den Frequenzgang der Transformator Vorverstärker erlaubten niedrigsten Anregungsfrequenz und anschließender Aufzeichnung des Frequenzgangs des thermischen Systems. Eine schlecht präparierte Probe verrät sich hier durch ein frequenzabhängiges Spannungsverhältnis $V_{b/p}/V_{a/p}$. Ein weiteres Kriterium zur Beurteilung der Probenpräparation ergibt sich aus der Tatsache, daß Indium bei $T \approx 20$ K eine große phonon-drag Anomalie aufweist, die sich bei einer schlecht präparierten Probe im Tieftemperaturbereich in Form eines kleinen Buckels in den Meßdaten bemerkbar macht.

V. Leistungsfähigkeit der ac-Meßanordnung

Mit dem in diesem Abschnitt beschriebenen ac-Verfahren ist die Thermokraft verschiedener ferromagnetischer amorpher Legierungen /12/ untersucht worden.

Abb. 5 zeigt zunächst die bei $T = 294$ K gemessene Frequenzabhängigkeit der ac-Amplitude ΔT_{ac} für eine amorphe $Fe_{80}B_{20}$ -Legierung. Die durchgezogene Kurve repräsentiert die an die Datenpunkte angepaßte Funktion

$$\Delta T_{ac}(f) = \frac{\Delta T_{dc}}{\sqrt{1 + Af^2 + Bf^4}}, \quad (12)$$

die ihren Ursprung in Gl. (8) hat. Die Anpassungsparameter A, B und ΔT_{dc} (~ 19 mK) werden natürlich stark durch präparative Details beeinflusst; aber Abb. 5 zeigt klar, daß Gl. (8) erfolgreich auf das thermische System angewendet werden kann, wenn adäquate experimentelle Vor-

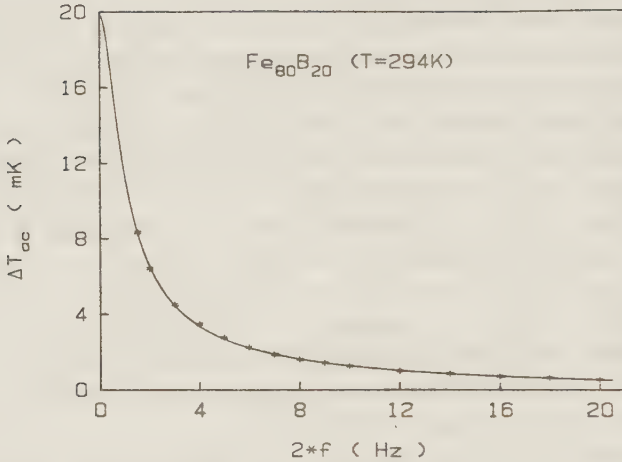


Abb. 5: Frequenzabhängigkeit der ac-Amplitude ΔT_{ac} für eine amorphe $\text{Fe}_{80}\text{B}_{20}$ Probe bei $T = 294 \text{ K}$. Die durchgezogene Kurve repräsentiert die nach Gl. (12) an die experimentellen Daten angepaßte Ausgleichsfunktion.

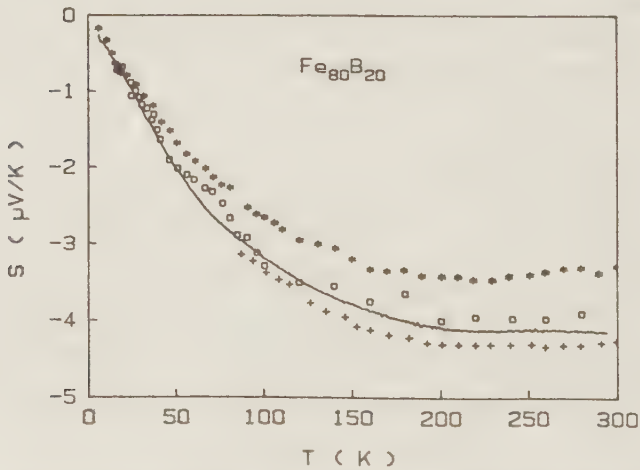


Abb. 6: Temperaturabhängigkeit der Thermokraft S einer amorphen $\text{Fe}_{80}\text{B}_{20}$ Legierung. Die Symbole *, o und + beziehen sich auf Messungen von /13/ Elzinga/Schroeder (integrales Verfahren), Baibich/Muir (integrales Verfahren) und Belanger/Destry (differentielles Verfahren).

kehrungen getroffen worden sind.

In den Abbn. 6 und 7 ist die Temperaturabhängigkeit (4 - 300 K) der Thermokraft zweier mit dem melt-spin Verfahren hergestellter amorpher Legierungen (Querschnitt der Proben $\sim 0.02 \times 2 \text{ mm}^2$) dargestellt.

Abb. 6 zeigt die Temperaturabhängigkeit der Thermokraft von $\text{Fe}_{80}\text{B}_{20}$ im Vergleich zu analogen Ergebnissen anderer Autoren /13/, die unabhängig voneinander in drei verschiedenen Laboratorien die Thermokraft von Proben nominell gleicher Zusammensetzung aber unterschiedlicher Herkunft gemessen haben. Zwei dieser Datensätze sind mit einem integralen Verfahren erhalten worden, während der dritte mit einer differentiellen Methode gemessen worden ist. Wie Abb. 6 zeigt, weichen die in der vorliegenden Arbeit erzielten Daten erheblich von den auf Elzinga/Schroeder zurückgehenden Ergebnissen ab, sind aber in guter Übereinstimmung mit den übrigen Datensätzen. Die oben genannten Autoren geben keine Erklärung für die offensichtlichen Diskrepanzen zwischen den mit verschiedenen Verfahren erhaltenen Ergebnissen an. Für eine vorläufige Erklärung können folgende Argumente vorgebracht werden: (i) bei dem integralen Meßverfahren ist der Einfluß parasitärer thermoelektrischer Spannungen experimentell nicht so gut kontrollierbar (im Gegensatz zum differentiellen Meßverfahren), was insbesondere bei Proben mit sehr kleinen Thermokräften die Ursache für systematisch verfälschte Ergebnisse sein kann, (ii) kleine Änderungen der experimentellen Parameter bei der Herstellung der Proben (wie z. B. die Temperatur der Schmelze und die Abkühlrate) führen sicherlich zu unterschiedlichen eingefrorenen Zuständen, so daß ein Vergleich von Messungen an Proben verschiedener Hersteller zu Fehlinterpretationen Anlaß geben kann. In Anbetracht der guten Übereinstimmung der mit einer differentiellen Meßanordnung erzielten Ergebnisse und der größeren Abweichungen und Streuung der mit einem integralen Meßverfahren erzielten Ergebnisse scheint hier das zuerst genannte Argument eine plausiblere Erklärung zu liefern.

Abb. 7 zeigt die Thermokraft einer amorphen $\text{Fe}_{90}\text{Zr}_{10}$ Legierung, die einen magnetischen Phasenübergang mit einer Curie-Temperatur von $T_c = 223.9 \text{ K}$ aufweist. Es ist schon seit langem bekannt, daß bei kristallinen Ferromagneten die Steigungsänderung in der Thermokraft bei T_c mit den kritischen Fluktuationen des Spin-Systems verknüpft ist. Bei diesen Untersuchungen ist die erste Ableitung $1/4 \cdot dS/dT$ (Abb. 7) von größtem Interesse, da sie bei T_c divergiert. Die durch Anpassung eines Potenzgesetzes in der Umgebung von T_c ermittelten Exponenten können mit den theoretisch vorausgesagten verglichen werden. Aber zur Vermeidung von

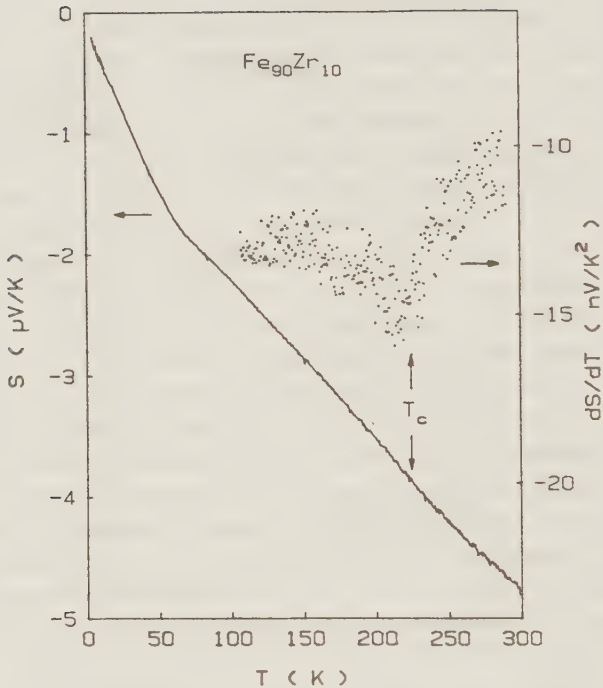


Abb. 7: Absolute Thermokraft S und Ableitung dS/dT einer amorphen $\text{Fe}_{90}\text{Zr}_{10}$ -Legierung als Funktion der Temperatur. Der eingezeichnete Pfeil markiert die aus Magnetisierungsmessungen ermittelte Curie-Temperatur $T_c = 223.9 \text{ K}$.

Rundungseffekten am Phasenübergang und um glaubwürdige kritische Exponenten zu erhalten, muß bei der Messung mit sehr kleinen Temperaturdifferenzen gearbeitet werden. Der abgebildete Datensatz ist daher in der Umgebung von T_c mit Temperaturdifferenzen von kleiner als 10 mK gemessen worden. Dies ist die erste Thermokraftmessung einer amorphen $\text{Fe}_{90}\text{Zr}_{10}$ -Legierung, die in der Ableitung dS/dT eindeutig eine Anomalie in der Umgebung von T_c zeigt; aber im Vergleich zu kristallinen ferromagnetischen Materialien scheint das kritische Verhalten stark unterdrückt zu sein (z. B. sind bei kristallinem Ni die Ableitung $|dS/dT|$ und die Änderung $\Delta(dS/dT)$ oberhalb T_c von der Größenordnung 200 nV/K^2). Die physikalischen Implikationen dieses Verhaltens werden an anderer Stelle dargelegt.

TEIL II: MESSERGEBNISSE UND DISKUSSION

§6 Nachweis eines magnetischen Beitrags zum spezifischen elektrischen

Widerstand amorpher $\text{Fe}_{80}\text{B}_{20-x}\text{C}_x$ - und $\text{Fe}_{82}\text{B}_{18-x}\text{Ge}_x$ -Legierungen

I. Einleitung

Die intensive wissenschaftliche Aktivität /1-4/ auf dem Gebiet des Elektronentransports in amorphen metallischen Legierungen in den letzten Jahren stand unter dem Zeichen fundamentaler Fragen wie (i) welchen Einfluß hat die eingefrorene Unordnung auf die elektronische Struktur und (ii) sind die Bandstruktur und das Glasbildungsvermögen amorpher Legierungen in einfacher Weise miteinander verknüpft? Von allen Transportkoeffizienten hat der spezifische elektrische Widerstand ρ die meiste Aufmerksamkeit gefunden. Trotz der Vielzahl durchgeführter Untersuchungen ist der Ursprung für das Phänomen des Widerstandsminimums /2/ und der T^2 -Abhängigkeit von ρ bei tiefen Temperaturen strittig. Da der letztere kontroverse Aspekt von $\rho(T)$ ein Hauptanliegen dieses Kapitels ist, verlangt er eine ausführlichere Beschreibung.

Die für ein breites Spektrum glasiger metallischer Legierungen (das sowohl nicht-magnetische als auch magnetische Gläser umfaßt) charakteristische Temperaturabhängigkeit des spezifischen elektrischen Widerstands $\rho(T)$ kann wie folgt zusammengefaßt werden. $\rho(T)$ zeigt ein Kondo-ähnliches Minimum (das bei einigen nicht-magnetischen Gläsern nicht beobachtet wird), variiert mit T^2 bei mittleren Temperaturen (normalerweise für $40 \text{ K} \leq T \leq 100 \text{ K}$) und geht bei hohen Temperaturen (oberhalb $\sim 150 \text{ K}$) in eine lineare Temperaturabhängigkeit über. In der Praxis /5-7/ ist der magnetische Zustand der hier betrachteten Klasse glasiger Legierungen üblicherweise ignoriert worden, und die Widerstandsdaten im Bereich mittlerer und hoher Temperaturen werden im Rahmen des Diffraktions-Modells /8/ gedeutet, in dem nicht nur die Streuung der Leitungselektronen an den muffin-tin Potentials der Ionenrümpfe berücksichtigt wird, sondern auch die Änderung in der Form des Strukturfaktors $S(q)$, wenn T variiert wird. Dafür kann man zwei Gründe anführen. Erstens weist ρ bei mittleren und hohen Temperaturen für magnetische und nicht-magnetische Gläser die gleiche Temperaturabhängigkeit auf, und zweitens sagt das Diffraktions-Modell die quadratische und lineare Temperaturabhängigkeit von ρ bei tiefen ($T \ll \theta_D$; θ_D = Debye-Temperatur) bzw. hohen ($T \gtrsim \theta_D$) Temperaturen voraus. Indes gibt es eine Vielzahl experimentel-

ler Anhaltspunkte dafür, daß das Diffraktions-Modell insbesondere für ferromagnetische amorphe Legierungen keine adäquate Beschreibung für den T^2 -Term in $\rho(T)$ gibt. Beispielsweise ist die Existenz wohldefinierter, langwelliger Spinwellen-Anregungen in ferromagnetischen Gläsern, die der normalen Dispersionsrelation $\hbar\omega_k = Dk^2$ für Ferromagnete genügen, durch inelastische Neutronenstreuung und Messungen der Magnetisierung und des Mößbauer-Effekts /9/ klar erwiesen, und man beobachtet eine scharfe Anomalie in der Ableitung $d\rho/dT$ des Widerstands ρ bei der Curie-Temperatur, die an das kritische Widerstandsverhalten kristalliner Ferromagnete erinnert. Diese Beobachtungen unterstreichen, daß neben der Streuung von Leitungselektronen an der strukturellen Unordnung die Elektron-Magnon Streuung (die bei tiefen Temperaturen zu einer quadratischen Temperaturabhängigkeit für kristalline ferromagnetische 3d Übergangsmetalle führt) einen signifikanten Beitrag zum Widerstand magnetischer Gläser liefert und folglich die völlige Vernachlässigung des magnetischen Beitrags $\rho_{\text{mag}}(T)$ bei der Analyse von Widerstandsdaten ferromagnetischer Gläser nicht korrekt ist. Theoretische Untersuchungen /11, 12/, in denen diese Ansicht aufgegriffen und $\rho_{\text{mag}}(T)$ für amorphe Ferromagnete in Spinwellen-Näherung berechnet wird, zeigen, daß (i) $\rho_{\text{mag}}(T)$ sich aus zwei positiven Beiträgen zusammensetzt; einem Beitrag, der wie bei kristallinen Ferromagneten mit T^2 variiert, und einem zweiten mit einem $T^{3/2}$ -Verhalten, und (ii) der Beitrag des $T^{3/2}$ -Terms (der nur im amorphen Fall auftritt) zu $\rho_{\text{mag}}(T)$ den des T^2 -Terms um mindestens zwei Größenordnungen übertrifft. Diese Theorien sagen daher für amorphe Ferromagnete ein $T^{3/2}$ -Potenzgesetz für $\rho(T)$ bei tiefen Temperaturen voraus, im Gegensatz zu der bei diesen Materialien gefundenen T^2 -Abhängigkeit. Dieser Widerspruch zwischen Theorie und Experiment ist als Indiz für /11/ oder gegen /12/ einen magnetischen Ursprung des beobachteten T^2 -Terms gewertet worden. Trotz der Tatsache, daß eine klare Unterscheidung zwischen T^2 - und $T^{3/2}$ -Potenzgesetzen in einem begrenzten Temperaturbereich (typisch 40 bis 100 K) erfahrungsgemäß ein schwieriges Problem aufwirft, ist für einige amorphe ferromagnetische Bänder /13-16/ und gesputterte Filme /17/ auf Fe- und Fe-Ni-Basis ein experimenteller Nachweis für einen gebrochenen Exponenten (3/2) und somit für einen Elektron-Magnon Beitrag zu ρ behauptet worden. Wie aber schon von Mogro-Campero et al. /16/ gezeigt worden ist, kann die Anpassung eines Potenzgesetzes mit einem Exponenten 3/2 in einem gewissen Temperaturbereich ($T_{\text{min}} \leq T \leq T_{\text{max}}$) nicht als eindeutiger Beweis für einen magnetischen Beitrag zu ρ angesehen werden, da der Temperaturbereich $T_{\text{min}} \leq$

$T \leq T_{\max}$ in den Übergangsbereich zwischen dem beobachteten asymptotischen T^2 - ($T \leq T_{\min}$) und T -Verhalten ($T \geq T_{\max}$) fällt und dieser Übergangsbereich auch gut durch ein $T^{3/2}$ -Gesetz beschrieben werden kann. So kann eine Erklärung des experimentellen Befunds in Sinne der Elektron-Ion Streuung allein nicht völlig ausgeschlossen werden.

In der Absicht, zur Klärung der oben geschilderten Kontroverse um den Ursprung des T^2 -Potenzgesetzes im $\rho(T)$ -Verhalten ferromagnetischer Gläser bei mittleren Temperaturen beizutragen, wurden detaillierte Untersuchungen des spezifischen elektrischen Widerstands an den Systemen $\text{Fe}_{80}\text{B}_{20-x}\text{C}_x$ und $\text{Fe}_{82}\text{B}_{18-x}\text{Ge}_x$ durchgeführt. Der Grund für die Wahl dieser Systeme entsprang der Vorstellung, daß der magnetische Beitrag zu ρ in Legierungen mit hohem Übergangsmetall-Gehalt leichter nachzuweisen sein sollte als in denen mit geringer Übergangsmetall-Konzentration. Darüber hinaus sollte sich die entgegengesetzte Variation des magnetischen Moments pro Legierungsatom (μ) mit der Konzentration $x/34, 35, 37/$ in den beiden Legierungsreihen insbesondere in der Konzentrationsabhängigkeit der Größen niederschlagen, die in direkter Weise mit μ verknüpft sind. Eine umfangreiche Datenanalyse der experimentellen Ergebnisse ermöglicht es erstmalig, die Existenz eines magnetischen Beitrags $\rho_{\text{mag}}(T)$ zu ρ zweifelsfrei nachzuweisen und eine verlässliche Abschätzung von ρ_{mag} in diesen Legierungen anzugeben.

II. Theoretischer Hintergrund

Der experimentelle Befund, daß die elektrischen Transporteigenschaften amorpher Metalle i. a. denen korrespondierender flüssiger Metalle /18/ sehr ähnlich sind, hat dazu geführt, den ursprünglich von Ziman /19/ für flüssige Metalle vorgeschlagenen und von Edwards et al. /20/ für flüssige Übergangsmetalle erweiterten theoretischen Formalismus zur Erklärung einer Reihe beobachteter Besonderheiten in den Transporteigenschaften metallischer Gläser zu benutzen. Diese Theorie behandelt die Streuung der Leitungselektronen am Potential des ungeordneten Gitters des Übergangsmetall-Systems und führt zu dem folgenden Ausdruck für den spezifischen elektrischen Widerstand

$$\rho \approx \frac{30\pi^3 \hbar^3}{m e^2 k_F^2 E_F \Omega} \sin^2 \eta_2(E_F) S_T(2k_F) \quad , \quad (1)$$

wobei k_F und E_F für den Fermi-Wellenvektor bzw. die Fermi-Energie stehen; Ω ist das atomare Volumen, $\eta_2(E_F)$ die partielle d-Streuphase, die

die Streuung der Leitungselektronen an den auf den Ionenpositionen zentrierten "muffin-tin" Potentialen beschreibt, $S_T(2k_F)$ der temperaturabhängige Strukturfaktor, und $\hbar$, m und e haben ihre übliche Bedeutung. In dieser Beziehung bestimmt $S_T(2k_F)$ die Temperaturabhängigkeit von ρ . Im Rahmen des Diffraktions-Modells ist $S_T(2k_F)$ auf verschiedene Weise berechnet worden /8, 21, 22/, wovon in dieser Arbeit die Beziehung /8/

$$S_T(k) = 1 + \{S_E(k) - 1\} \exp(-2W_k(T)) \quad (2)$$

benutzt wird, in der $S_E(k)$ der Gleichgewichtsstrukturfaktor ist und $\exp(-2W_k(T))$ der Debye-Waller Faktor, in dem $W_k(T)$ in Debye'scher Näherung durch /23/

$$W_k(T) = W_k(0) + 4W_k(0) \left(\frac{T}{\theta_D}\right)^2 \int_0^{\theta_D/T} \frac{z \, dz}{e^z - 1} \quad (3a)$$

mit

$$W_k(0) = 3\hbar^2 k^2 / (8Mk_B \theta_D) \quad (3b)$$

gegeben ist (M ist die atomare Masse, k der Wellenvektor und k_B die Boltzmann Konstante). Mit Hilfe von Gl. (1) und (2) kann der Widerstand als Funktion der Temperatur durch

$$\rho_{\text{str}}(T) = \frac{30\pi^3 \hbar^3}{m e^2 k_F^2 \Omega} \sin^2 \eta_2(E_F) \left\{ 1 + [S_0(2k_F) - 1] \exp[-2(W_{2k_F}(T) - W_{2k_F}(0))] \right\} \quad (4)$$

ausgedrückt werden. Hier ist anzumerken, daß ρ_{str} der strukturelle Beitrag zum Gesamtwiderstand ρ ist und die Parameter $W_{2k_F}(T)$ und $W_{2k_F}(0)$ in Gl. (4) die Werte von $W_k(T)$ und $W_k(0)$ bei $k = 2k_F$ bezeichnen, d. h.

$$W(0) = W_{2k_F}(0) = \frac{3\hbar^2 k_F^2}{2Mk_B \theta_D} \quad (5)$$

ersetzt $W_k(0)$ in den Gln. (3a) und (3b). Läßt man zur Vereinfachung im folgenden den Index " $2k_F$ " bei $W_{2k_F}(T)$ und $W_{2k_F}(0)$ und "str" bei ρ_{str} weg, so ist der mit Gl. (4) berechnete Temperaturkoeffizient des Widerstands durch

$$\begin{aligned} \alpha &= \frac{1}{\rho} \frac{\partial \rho}{\partial T} = 2 \frac{1 - S_T(2k_F)}{S_T(2k_F)} \frac{\partial W(T)}{\partial T} \\ &= 8 \frac{1 - S_T(2k_F)}{S_T(2k_F)} \frac{W(0)}{T} \left\{ 2 \left(\frac{T}{\theta_D}\right)^2 \int_0^{\theta_D/T} \frac{z \, dz}{e^z - 1} - \frac{1}{\exp(\theta_D/T) - 1} \right\} \quad (6) \end{aligned}$$

gegeben, wobei $\partial W(T)/\partial T$ über Gl. (3a) berechnet worden ist. Gl. (6) zeigt, daß im gesamten Temperaturbereich $\partial W(T)/\partial T > 0$ ist und α somit für $S_T(2k_F) > 1$ negativ und für $S_T(2k_F) < 1$ positiv wird. Anders ausgedrückt heißt dies, daß ein negatives α nur dann zu erwarten ist, wenn $2k_F$ in der Nähe von k_p liegt, das die Position des ersten Maximums von $S(k)$ kennzeichnet; ansonsten sollte α positiv sein.

Bei tiefen und hohen Temperaturen reduziert sich Gl. (3a) auf

$$W(T) \approx \begin{cases} W(0) + 4W(0)\frac{\pi^2}{6} \left(\frac{T}{\theta_D}\right)^2 & , T \ll \theta_D \\ 4W(0)\frac{T}{\theta_D} & , T \gtrsim \theta_D \end{cases} \quad (7a)$$

$$(7b)$$

Eine Abschätzung von $W(0)$ mit den für metallische Gläser typischen Werten $\theta_D \approx 300$ K, $M \approx 8 \times 10^{-23}$ g und $E_F \approx 10$ eV über die Beziehung $W(0) = 3\hbar^2 k_F^2 / (2Mk_B \theta_D) = 3(E_F / k_B \theta_D)(m/M)$ zeigt, daß $W(0) \approx 0.013$. Faßt man die Gln. (4) und (7) zusammen und entwickelt wegen $W(0) \ll 1$ die Exponentialfunktion in der modifizierten Gl. (4) in eine Potenzreihe, so erhält man für die asymptotische Temperaturabhängigkeit von ρ

$$\rho(T) \approx \begin{cases} C \left\{ S_0(2k_F) + \frac{(2\pi)^2}{\theta_D^2} \frac{W(0)}{3} [1 - S_0(2k_F)] T^2 \right\} & , T \ll \theta_D \\ C \left\{ S_0(2k_F) - 2W(0) [1 - S_0(2k_F)] + \frac{8W(0)}{\theta_D} [1 - S_0(2k_F)] T \right\} & , T \gtrsim \theta_D \end{cases} \quad (8a)$$

$$(8b)$$

mit

$$C = \frac{30\pi^3 \hbar^3}{m^2 k_F^2 E_F \Omega} \sin^2 \eta_2(E_F) \quad .$$

Um den direkten Vergleich zwischen Theorie und Experiment zu erleichtern, wird in dieser Arbeit eine andere Form von Gl. (4) benutzt, nämlich

$$\begin{aligned} r(T) &= \frac{\rho(T)}{\rho(T_0)} = a_1 + a_2 e^{-2(W(T) - W(0))} \\ &= a_1 + a_2 \exp \left\{ -8W(0) \left(\frac{T}{\theta_D}\right)^2 \int_0^{\theta_D/T} \frac{z \, dz}{e^z - 1} \right\} \\ &\equiv f_1(T) \quad , \end{aligned} \quad (9)$$

wobei

$$a_1 = \left\{ 1 + [S_0(2k_F) - 1] \exp(-2(W(T_0) - W(0))) \right\}^{-1}, \quad (10a)$$

$$a_2 = a_1 [S_0(2k_F) - 1], \quad (10b)$$

oder

$$S_0(2k_F) = 1 + (a_2/a_1),$$

mit $T_0 = 273.15$ K.

Im Hinblick auf die in der Einleitung geschilderten experimentellen Hinweise ist zu erwarten, daß bei tiefen Temperaturen die Elektron-Magnon Streuung einen signifikanten Beitrag zu ρ in ferromagnetischen metallischen Gläsern verursacht. Im Rahmen des Spinunordnung-Modells haben Richter et al.¹² $\rho_{\text{mag}}(T)$ für einen amorphen Heisenberg Ferromagneten bei tiefen Temperaturen in Spinwellen-Näherung zu

$$\frac{\rho_{\text{mag}}(T)}{\rho_{\text{mag}}(0)} = 1 + \frac{\Omega_c}{(2\pi)^2 S} \Gamma(3/2) \zeta(3/2) \left(\frac{k_B T}{D}\right)^{3/2} + \frac{1}{J_S(2k_F)} \left\{ \frac{\pi^2}{3S} \left(\frac{k_B T}{D}\right)^2 - \int_0^{2k_F} \frac{dk \, k^3 S(k) (\hbar \omega_k / k_B T)}{(\exp(\hbar \omega_k / k_B T) - 1)(1 - \exp(-\hbar \omega_k / k_B T))} \right\} \quad (11a)$$

berechnet mit

$$\rho_{\text{mag}}(0) = \frac{2\Omega_c}{3\hbar} \left(\frac{\Omega}{N_e e} m S J_{sd} \right)^2 J_S(2k_F), \quad (11b)$$

wobei Ω_c und Ω für das atomare bzw. Probenvolumen stehen; S ist der Spin der lokalen magnetischen Momente, N_e bezeichnet die Zahl der Elektronen, D ist die durch die Magnonen-Dispersionsrelation $\hbar \omega_k = Dk^2$ gegebene Spinwellen Steifigkeitskonstante, Γ und ζ sind die Gamma- und Riemann'sche Zeta-Funktion, und J_S ist gegeben durch

$$J_S(2k_F) = \int_0^{2k_F} k^3 S(k) dk.$$

Der zweite Term in Gl. (11a) ist das Ergebnis einer partiellen Kompensation zweier konkurrierender $T^{3/2}$ -Beiträge; einem mit der Temperatur ansteigenden inkohärenten (nicht quasiimpulserhaltenden) Elektron-Magnon Streubeitrag und einem zweiten, durch elastische Streuung der Leitungselektronen an zufällig orientierten, temperaturabhängigen lokalen Momenten verursachten Anteil, der mit steigender Temperatur abnimmt. Die kohärenten Spinwellen-Beiträge sind in dem dritten (T^2 -) Term ent-

halten, den man auch für den kristallinen Referenzzustand ableitet. Der durch die Unordnung verursachte vierte (Integral-) Term liefert nur eine kleine Korrektur für den T^2 -Term, wodurch angezeigt wird, daß die kohärente Streuung der Leitungselektronen an langwelligen Magnonen nicht wesentlich von der eingefrorenen Unordnung beeinflusst wird. An Gl. (11) ist noch bemerkenswert, daß sowohl der magnetische Restwiderstand $\rho_{\text{mag}}(0)$ als auch der $T^{3/2}$ -Term für kristalline Ferromagnete verschwinden. Im Blick auf die relative Bedeutung der T^2 - und $T^{3/2}$ -Beiträge haben Richter et al. /12/ die Größenordnung dieser Terme unter der Annahme $a = 3 \text{ \AA}$, $\Omega_c = a^3$, $S = 1$, $D = 185 \text{ meV\AA}^2$ und $k_F = 1.36 \text{ \AA}^{-1}$ zu

$$\frac{\rho_{\text{mag}}(T)}{\rho_{\text{mag}}(0)} = 1 + 1.6 \times 10^{-5} T^{3/2} + 2.4 \times 10^{-7} T^2 \quad (12)$$

abgeschätzt, wobei die Temperatur in Kelvin einzusetzen ist. Gl. (12) zeigt, daß im Gegensatz zur T^2 -Abhängigkeit von $\rho_{\text{mag}}(T)$ für den kristallinen Fall bei amorphen Ferromagneten in $\rho_{\text{mag}}(T)$ im Tieftemperaturbereich der $T^{3/2}$ -Term dominieren sollte.

III. Meßergebnisse und Analyse

Die Temperaturabhängigkeit des normierten Widerstandsverhältnisses $r(T) = \rho(T)/\rho(T_0)$ amorpher $\text{Fe}_{80}\text{B}_{20-x}\text{C}_x$ - und $\text{Fe}_{82}\text{B}_{18-x}\text{Ge}_x$ -Legierungen ist in Abb. 1 im Temperaturbereich 4.2 - 300 K für $x = 0, 2, 4$ und 10 bzw. $x = 2, 4$ und 6 dargestellt. Aus der Abbildung ist zu ersehen, daß die gesamte relative Widerstandsänderung im untersuchten Temperaturbereich mit zunehmendem C-Gehalt abnimmt, während mit zunehmendem Ge-Gehalt ein Anwachsen zu verzeichnen ist. In keinem Fall übersteigt die gesamte Widerstandsänderung 6% des Widerstandsverhältnisses r bei $T = 300 \text{ K}$. Im Tieftemperaturbereich (10 - 25 K) durchläuft der Widerstand als Funktion der Temperatur ein wohldefiniertes Widerstandsminimum bei einer Temperatur T_{min} , die näherungsweise linear mit x ansteigt (Einschübe in Abb. 1).

Die Abbildungen 2 und 3 demonstrieren, daß der Widerstand als Funktion der Temperatur in guter Näherung durch die Beziehungen

$$r(T) = \beta_0 + \beta_1 \ln T \quad \text{für } T < T_{\text{min}} \quad (13)$$

und

$$r(T) = \alpha_0 + \alpha_2 T^2 \quad \text{für } T > T_{\text{min}} \quad (14)$$

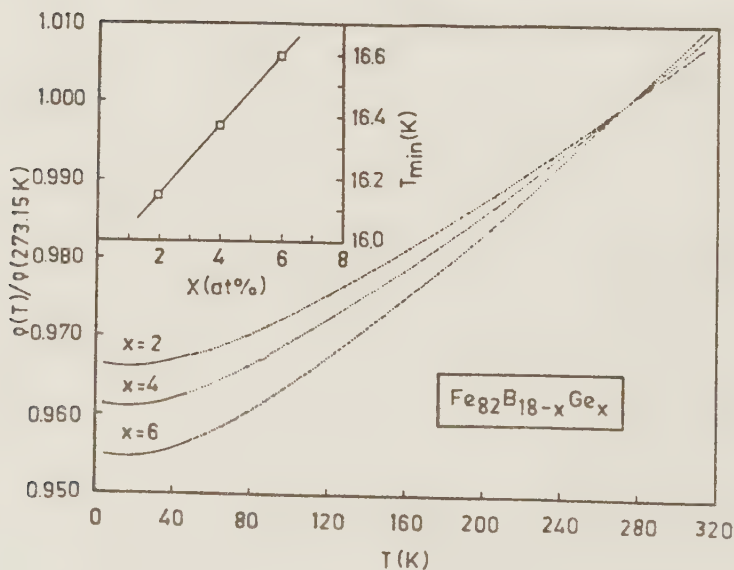
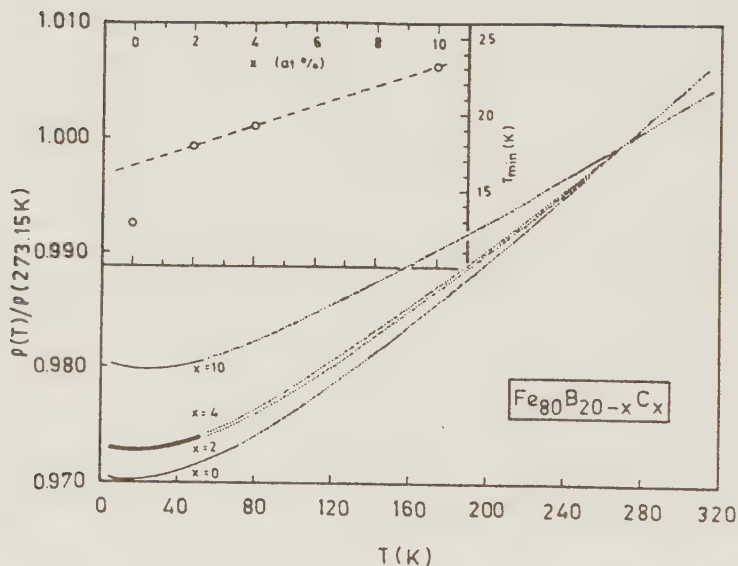


Abb. 1: Temperaturabhängigkeit des normierten Widerstandsverhältnisses $r(T) = \rho(T)/\rho(T_0)$ amorpher $\text{Fe}_{80}\text{B}_{20-x}\text{C}_x$ (oben) und $\text{Fe}_{82}\text{B}_{18-x}\text{Ge}_x$ Legierungen (unten). Der jeweilige Einschub zeigt die Konzentrationsabhängigkeit von $T_{\min}$.

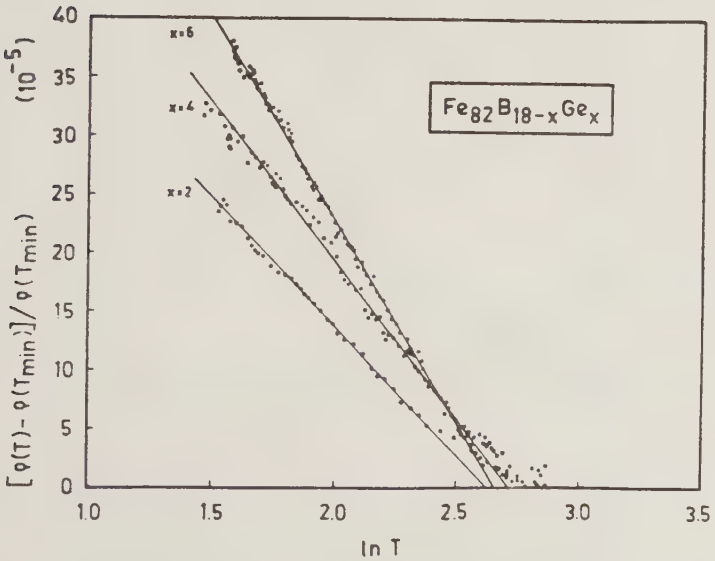
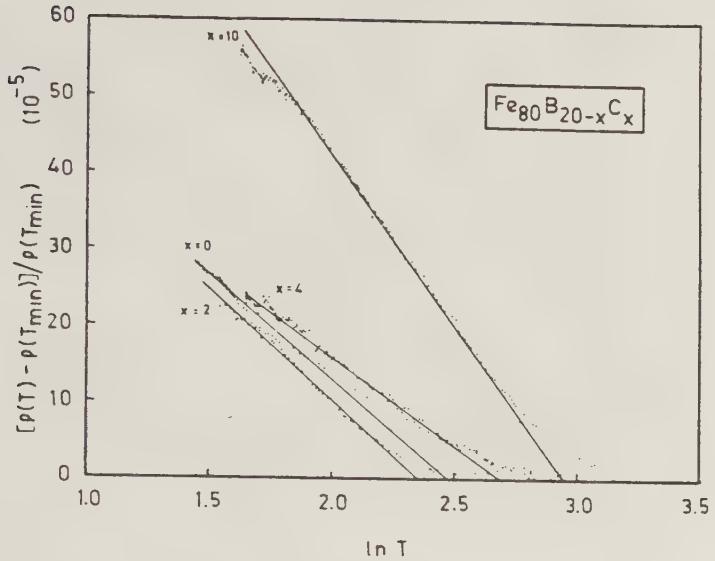


Abb. 2: Relative Widerstandsänderung $(\rho(T) - \rho(T_{\min}))/\rho(T_{\min})$ als Funktion von $\ln(T)$ amorpher $\text{Fe}_{80}\text{B}_{20-x}\text{C}_x$ - (oben) und $\text{Fe}_{82}\text{B}_{18-x}\text{Ge}_x$ -Legierungen (unten). Die durchgezogenen Linien sollen nur die lineare Abhängigkeit verdeutlichen.

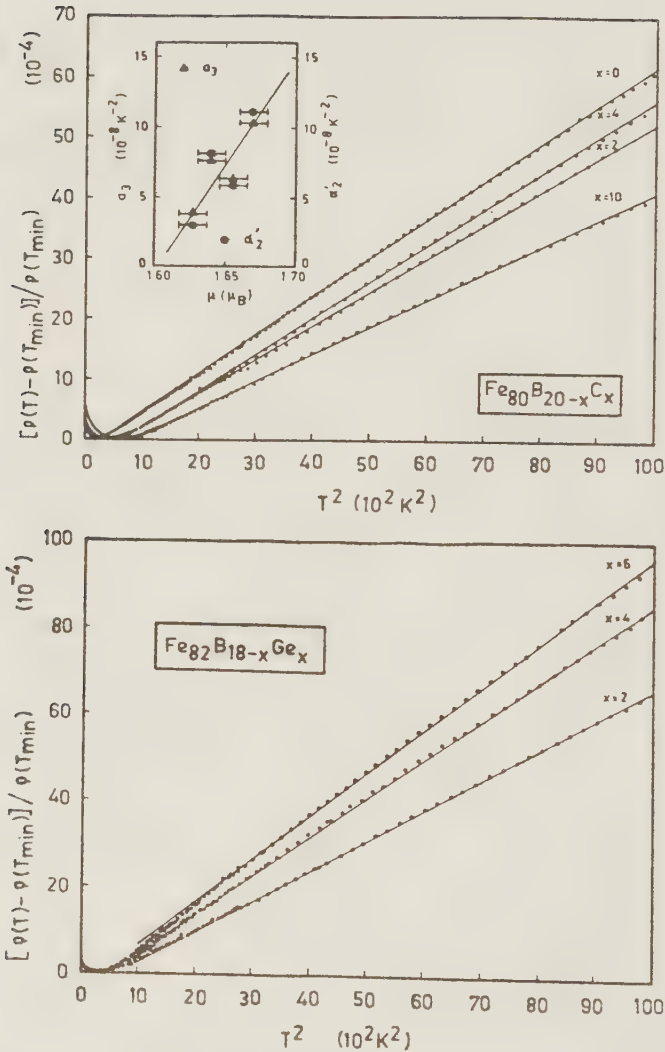


Abb. 3: Relative Widerstandsänderung $(\rho(T) - \rho(T_{\min})) / \rho(T_{\min})$ amorpher $Fe_{80}B_{20-x}C_x$ - (oben) und $Fe_{82}B_{18-x}Ge_x$ - Legierungen (unten) als Funktion von T^2 . Die durchgezogenen Linien sollen nur die lineare Abhängigkeit verdeutlichen. In dem Einschub (oben) sind die Koeffizienten α_3 und α'_2 gegen das magnetische Moment μ aufgetragen. Die Ausgleichsgerade durch die Datenpunkte ist ebenfalls dargestellt.

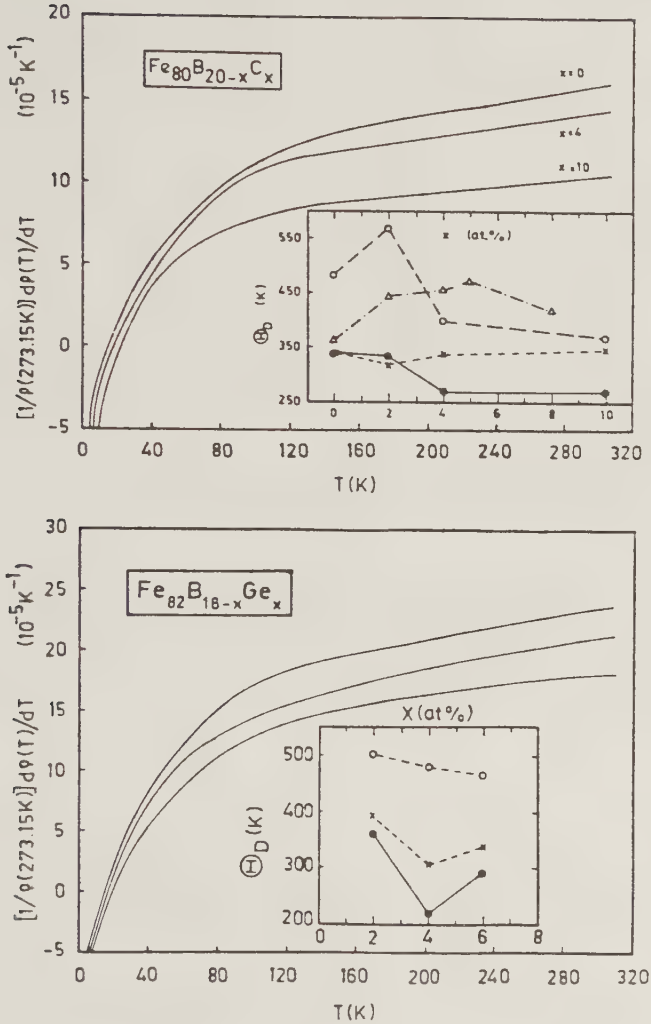


Abb. 4: Ableitung $r'(T)$ des normierten Widerstandsverhältnisses amorpher $\text{Fe}_{80}\text{B}_{20-x}\text{C}_x$ - (oben) und $\text{Fe}_{82}\text{B}_{18-x}\text{Ge}_x$ -Legierungen (unten) als Funktion der Temperatur. Die Einschübe zeigen die Konzentrationsabhängigkeit der Debye-Temperatur Θ_D : offene Kreise, Θ_D -Werte aus den $f_1(T)$ -Fits; geschlossene Kreise, Θ_D -Werte aus den $f_2(T)$ -Fits; Kreuze, Θ_D -Werte aus den asymptotischen Fits (Gl. (20)); offene Dreiecke, Θ_D -Werte aus Messungen der spezifischen Wärmekapazität nach Referenz /36/.

Tabelle I: Parameter der Tieftemperatur-Fits nach Gl. (13) und (14) für amorphe $\text{Fe}_{80}\text{B}_{20-x}\text{C}_x$ - (*) und $\text{Fe}_{82}\text{B}_{18-x}\text{Ge}_x$ -Legierungen (#). Die Zahlen in den Klammern geben den Fehler in der letzten signifikanten Stelle an.

x (at%)	α_0	α_2 (10^{-7}K^{-2})	Fit-Bereich		β_0	β ($10^{-4}\ln\text{K}$)	Fit-Bereich	
			ΔT (K)	χ^2 (10^{-10})			ΔT (K)	χ^2 (10^{-11})
0*	0.970	6.13(1)	50-100	3.70	0.971	-3.28(2)	4-8	1.13
2*	0.972	5.52(1)	50-100	2.67	0.973	-1.81(2)	5-12	1.15
4*	0.973	5.85(2)	50-100	7.11	0.973	-2.21(2)	4.5-12	2.83
10*	0.979	4.41(2)	50-100	5.23	0.981	-4.31(2)	6-15.5	2.23
2#	0.966	6.82(1)	50-100	5.26	0.967	-2.09(2)	4.5-11	1.45
4#	0.961	8.47(4)	50-100	37.7	0.962	-2.55(3)	4.5-12	4.70
6#	0.954	9.45(3)	50-100	22.5	0.956	-3.35(2)	4.5-12	2.29

Tabelle II: Parameter der Hochtemperatur-Fits nach Gl. (15) für amorphe $\text{Fe}_{80}\text{B}_{20-x}\text{C}_x$ - (*) und $\text{Fe}_{82}\text{B}_{18-x}\text{Ge}_x$ -Legierungen (#). Die Zahlen in den Klammern geben den Fehler in den letzten signifikanten Stellen an.

x (at%)	α'_0	α'_1 (10^{-4}K^{-1})	α'_2 (10^{-8}K^{-2})	Fit-Bereich		χ^2 (10^{-10})	θ_D (K)
				ΔT (K)			
0*	0.965	1.029(3)	9.71(7)	120-300		5.04	328(4)
	0.964	1.106(12)	8.15(25)	200-300		3.59	342(4)
2*	0.968	0.909(4)	10.02(9)	120-300		11.5	331(5)
	0.968	0.854(11)	11.15(21)	200-300		4.35	319(5)
4*	0.968	0.897(5)	9.57(11)	120-300		14.9	301(7)
	0.971	1.083(17)	5.83(33)	200-300		9.71	338(7)
10*	0.976	0.725(3)	5.55(8)	120-300		8.42	310(5)
	0.974	0.858(11)	3.00(21)	200-300		4.54	349(5)
2#	0.959	1.185(1)	11.00(2)	120-300		13.4	341(5)
	0.957	1.350(12)	7.78(24)	200-300		5.06	368(4)
4#	0.955	1.226(1)	15.16(2)	120-300		29.4	290(6)
	0.954	1.335(22)	12.85(1)	200-300		0.20	306(2)
6#	0.947	1.522(2)	15.61(4)	120-300		16.0	317(4)
	0.938	2.209(22)	2.25(42)	200-300		17.2	394(5)

in den Temperaturbereichen $4 \leq T \leq 12$ K bzw. $50 \leq T \leq 100$ K beschrieben werden kann. Eine Anpassung von Gl. (13) und (14) in den spezifizierten Temperaturbereichen ergibt die in Tabelle I angeführten Werte für die Koeffizienten β_0 , β , α_0 und α_2 .

Zur Analyse des funktionalen Zusammenhangs zwischen ρ und T für $T > 100$ K ist in Abb. 4 die Ableitung von $r(T)$ nach der Temperatur als Funktion der Temperatur dargestellt. Wie ein Blick auf Abb. 4 zeigt, folgt $r(T)$ im Temperaturintervall $120 \leq T \leq 300$ K der einfachen Beziehung

$$r(T) = \alpha'_0 + \alpha'_1 T + \alpha'_2 T^2 \quad . \quad (15)$$

Eine genauere Analyse der Ableitung $r'(T) = dr(T)/dT$ zeigt allerdings, daß diese Kurven bis etwa 200 K noch eine geringe Krümmung aufweisen und erst oberhalb dieser Temperatur in einen linearen Bereich (d. h. $r'(T) \sim T$) übergehen. Dieser Umstand wird durch die Tatsache bestätigt, daß die im Temperaturbereich $T^* \leq T \leq 300$ K nach der Methode der kleinsten Fehlerquadrate ermittelten Anpassungsparameter α'_0 , α'_1 und α'_2 mit der unteren Intervallgrenze T^* variieren, wenn man die Intervallbreite durch Erhöhung von T^* vom Anfangswert $T^* = 120$ K bis zum Endwert $T^* = 200$ K schrittweise verkleinert; die Werte der Koeffizienten ändern sich nur noch unwesentlich, wenn der Temperaturbereich durch Erhöhung von T^* über 200 K hinaus weiter verkleinert wird. Die in den beiden extremen Anpassungsbereichen $120 \leq T \leq 300$ K und $200 \leq T \leq 300$ K ermittelten Werte für die Parameter α'_0 , α'_1 und α'_2 sind in Tabelle II zusammengestellt worden.

IV. Diskussion

Zunächst soll der magnetische Beitrag zu ρ vollständig ignoriert und versucht werden, eine quantitative Erklärung der Ergebnisse im Rahmen des Diffraktions-Modells zu finden. Nach diesem Modell sind die Änderung $\Delta\rho/\rho$ des spezifischen elektrischen Widerstands zwischen 0 und 300 K, der normierte Widerstand $r(300K)$ bei $T = 300$ K und der Temperaturkoeffizient α'_1 durch die Beziehungen

$$\frac{\Delta\rho}{\rho} = \frac{\rho(300K) - \rho(0K)}{\rho(0K)} = \frac{2(1 - S_0(2k_F))}{S_0(2k_F)} W(0) \left[\frac{4 \times 300}{\theta_D} - 1 \right] \quad , \quad (16)$$

$$r(300K) = \frac{S_0(2k_F) + 2W(0) [1 - S_0(2k_F)] [(4 \times 300 / \theta_D) - 1]}{S_0(2k_F) + 2W(0) [1 - S_0(2k_F)] [(4 \times T_0 / \theta_D) - 1]} \quad (17)$$

und

$$\alpha_1' = \frac{8W(0) [1 - S_0(2k_F)] / \theta_D}{S_0(2k_F) + 2W(0) [1 - S_0(2k_F)] [(4T_0/\theta_D) - 1]} \quad (18)$$

gegeben, die ihren Ursprung in Gl. (8) haben. Diese Beziehungen zeigen, daß ein direkter Vergleich zwischen Theorie und Experiment nicht ohne vorherige Kenntnis der Größen $W(0)$, θ_D und $S_0(2k_F)$ durchgeführt werden kann. Zur experimentellen Bestimmung dieser Größen ist Gl. (8), die die vollständige funktionale Form von $\rho(T)$ angibt, im Temperaturbereich $50 \leq T \leq 300$ K mit Hilfe eines nicht-linearen Fit-Programms /24/, in dem a_1 , a_2 , $W(0)$ und θ_D als freie Anpassungsparameter behandelt werden, an die $r(T)$ -Daten angepaßt worden. Die in dieser Weise ermittelten Parameterwerte und die korrespondierenden, mit den Gln. (5) und (10b) berechneten Werte für k_F und $S_0(2k_F)$ sind in Tabelle III aufgeführt. Die mit diesen Werten für $W(0)$, θ_D und $S_0(2k_F)$ berechneten theoretischen Werte für $\Delta\rho/\rho$, $r(300K)$ und α_1' (Gln. (16)-(18)) sind in Tabelle IV den analogen experimentellen Größen gegenüber gestellt. Den Tabellen III und IV ist zu entnehmen, daß (i) die gute Übereinstimmung zwischen berechneten und beobachteten Werten für $\Delta\rho/\rho$ und $r(300K)$ nur mit unphysikalisch großen k_F -Werten erkaufte wird, und (ii) trotz dieses hohen Preises die Diskrepanz zwischen experimentellen und theoretischen Werten für α_1' bestehen bleibt. Während die erste Beobachtung eine experimentelle Bestätigung für das theoretische Ergebnis /25/ ist, daß die erweiterte Faber-Ziman Theorie (auf der das Diffraktions-Modell basiert) die experimentellen Widerstandswerte metallischer Gläser mit stark streuenden Übergangselementen (Fe oder Co) nur dann reproduziert, wenn zu große Werte für E_F oder k_F gewählt werden, deutet die letztere an, daß das Diffraktions-Modell nicht dem zusätzlichen T^2 -Term Rechnung trägt, der bei hohen Temperaturen zu beobachten ist (Gl. (15)). In diesem Zusammenhang ist zu erwähnen, daß bis auf eine Ausnahme /26/ in allen bisherigen Untersuchungen ferromagnetischer metallischer Gläser nicht von der Existenz des zusätzlichen Terms in $\rho(T)$ bei hohen Temperaturen berichtet wird. Diese Unstimmigkeit zwischen den vorliegenden und bisherigen Beobachtungen an vergleichbaren glasigen Legierungen ist im wesentlichen darauf zurückzuführen, daß im Temperaturbereich $120 \leq T \leq 300$ K der lineare Term einen Beitrag zu ρ liefert, der mindestens eine Größenordnung größer als der des T^2 -Terms ist (vgl. Tabelle II). Die Rohdaten können insbesondere dann, wenn wie in den meisten Fällen nur eine geringe Anzahl von Meßpunkten vorliegt, in diesem Temperaturbereich auch gut durch eine Gerade approximiert werden. Obwohl die Exi-

Tabelle III: Parameter der Anpassung von $r(T) = f_1(T)$ (Gl. (9)) und $r(T) = f_1(T) + a_3 T^2 = f_2(T)$ (Gl. (22)) an die $r(T)$ -Daten amorpher $\text{Fe}_{80}\text{C}_{20-x}\text{Ge}_x$ (*) und $\text{Fe}_{82}\text{B}_{18-x}\text{Ge}_x$ -Legierungen (#) im Temperaturbereich $50 \leq T \leq 300$ K. Die Werte in den eckigen Klammern gehören zu der Anpassung mit $r(T) = f_2(T)$, während die Zahlen in den runden Klammern den Fehler in den letzten signifikanten Stellen angeben.

x (at%)	a_1	a_2	$w(0)$	θ_D (K)	$S_0(2k_F)$	k_F ($\text{\AA}^{-1}$)	χ^2 (10^{-9})	a_3 (10^{-8}K^{-2})	d (g/cm ³)	μ/Atom bei 77 K (μ_B)
* 0	1.270(4) [1.269(9)]	-0.300(4) [-0.299(9)]	0.0363(7) [0.0183(6)]	486(3) [341(2)]	0.764(14) [0.764(32)]	3.37(4) [2.00(3)]	9.311 [0.452]	[7.62(11)]	7.39 ^a	1.640(10) ^b
* 2	1.116(2) [1.080(3)]	-0.144(2) [-0.108(3)]	0.093(3) [0.044(2)]	571(7) [334(8)]	0.871(17) [0.900(28)]	5.85(10) [3.08(8)]	21.979 [3.365]	[10.36(24)]	7.41 ^a	1.670(10) ^a
* 4	1.534(5) [1.533(22)]	-0.562(5) [-0.561(22)]	0.0133(2) [0.0068(3)]	400(4) [271(5)]	0.634(9) [0.634(41)]	1.85(16) [1.09(3)]	8.926 [1.734]	[6.36(20)]	7.44 ^a	1.656(10) ^a
* 10	1.699(10) [1.699(16)]	-0.720(10) [-0.720(16)]	0.0069(1) [0.0040(2)]	370(3) [270(5)]	0.576(15) [0.576(2)]	1.28(1) [0.84(2)]	3.705 [1.172]	[3.82(17)]	7.51 ^a	1.627(10) ^a
# 2	1.307(6) [1.305(16)]	-0.341(6) [-0.339(16)]	0.0383(9) [0.0200(10)]	503(4) [362(3)]	0.739(17) [0.740(50)]	3.60(5) [2.21(6)]	11.758 [1.037]	[8.49(21)]	7.52 ^c	1.697(10) ^c
# 4	1.399(10) [1.398(11)]	-0.438(10) [-0.438(11)]	0.0316(11) [0.0085(2)]	481(6) [223(4)]	0.687(25) [0.687(2)]	3.24(6) [1.14(2)]	43.971 [2.542]	[15.25(16)]	7.61 ^c	1.722(10) ^c
# 6	1.821(9) [1.822(94)]	-0.866(9) [-0.868(94)]	0.0176(3) [0.0073(8)]	467(4) [293(6)]	0.524(11) [0.523(120)]	2.41(2) [1.23(7)]	32.755 [6.533]	[14.10(43)]	7.70 ^c	1.773(10) ^c

^aDaten aus Referenz /34/.

^bReferenz /35/; Wert bei 4.2 K.

^cReferenz /37/.

Tabelle IV: Gegenüberstellung experimentell beobachteter und theoretisch berechneter Werte für $\Delta\rho/\rho$, $r(300\text{K})$, und α_1' amorpher $\text{Fe}_{80}^{B}\text{Fe}_{20-x}\text{C}_x$ - (*) und $\text{Fe}_{82}^{B}\text{Fe}_{18-x}\text{Ge}_x$ -Legierungen (#). Die theoretischen Werte sind mit den Parametern aus der Anpassung der Funktionen $f_1(T)$ und $f_2(T)$ (vgl. Gl.n. (16)-(21)) an die $r(T)$ -Daten berechnet worden. Die Zahlen in den runden Klammern geben den Fehler in den letzten signifikanten Stellen an.

x (at%)	$\Delta\rho/\rho$ (%)		$r(300\text{ K})$				α_1' (10^{-4}K^{-1})	
	berechnet		berechnet		berechnet		berechnet	
	beobachtet	f_1	f_2	beobachtet	f_1	f_2	f_1	f_2
0*	3.47	3.29(37)	3.74(71)	1.0042	1.0048(5)	1.0049(9)	1.106(12)	1.285(287)
2*	3.16	3.03(67)	3.57(112)	1.0040	1.0050(11)	1.0048(12)	0.854(11)	1.136(456)
4*	3.19	3.07(22)	3.59(81)	1.0039	1.0040(3)	1.0045(9)	1.083(17)	1.124(288)
10*	2.28	2.28(21)	2.62(41)	1.0027	1.0029(3)	1.0033(4)	0.858(11)	0.853(150)
2#	3.83	3.75(55)	4.29(86)	1.0048	1.0056(9)	1.0057(11)	1.350(12)	1.497(312)
4#	4.43	4.30(71)	5.39(97)	1.0056	1.0062(22)	1.0018(45)	1.335(620)	1.327(697)
6#	5.14	5.02(68)	6.55(99)	1.0064	1.0071(23)	1.0085(28)	2.209(15)	1.721(744)

stanz eines T^2 -Terms bei tiefen und eines T -Terms bei hohen Temperaturen und der positive Temperaturkoeffizient für $S_0(2k_F) < 1$ (Tabelle III) in guter Übereinstimmung mit den Voraussagen des Diffraktions-Modells sind, findet man im Gegensatz zu den Voraussagen des Modells (nach denen $\rho \sim T$ für $T \gtrsim \theta_D$) ein lineares Verhalten von ρ bis weit unterhalb der Debye-Temperatur θ_D , wenn man für den Moment den relativ kleinen Beitrag des T^2 -Terms ignoriert. Zur weiteren Beleuchtung dieses Punktes ist festzuhalten, daß der dominante lineare Term ($\alpha_1' T$) in $\rho(T)$ bis hinab zu Temperaturen von 120 K zu beobachten ist, während das Diffraktions-Modell für die vorliegenden glasigen Legierungen θ_D -Werte zwischen 370 und 570 K liefert (vgl. Tabelle III). Diese θ_D -Werte sind zum Teil erheblich größer als der für kristallines Fe ermittelte Wert $\theta_D = 464 \text{ K}$ /27/. Ähnliche Beobachtungen sind kürzlich auch an amorphen Fe-B-Legierungen /7/ gemacht worden. Die oben erwähnten Inkonsistenzen zwischen den Voraussagen des Diffraktions-Modells und den experimentellen Ergebnissen legen nachdrücklich nahe, daß die völlige Vernachlässigung des magnetischen Beitrags zu ρ nicht gerechtfertigt ist.

In Anbetracht des theoretischen Ergebnisses /12/, daß bis zur zweiten Ordnung des Streupotentials die Matthiessen'sche Regel

$$\rho(T) = \rho_{\text{str}}(T) + \rho_{\text{mag}}(T) \quad (19)$$

gültig ist, wobei $\rho_{\text{str}}(T)$ und $\rho_{\text{mag}}(T)$ für den strukturellen bzw. magnetischen Beitrag zum Gesamtwiderstand stehen, kann man argumentieren, daß der magnetische Beitrag zu ρ im Tieftemperaturbereich nicht direkt beobachtbar ist, da sowohl $\rho_{\text{str}}(T)$ als auch $\rho_{\text{mag}}(T)$ einem T^2 Potenzgesetz genügen. Eine direkte Trennung ist erst bei höheren Temperaturen möglich, wo $\rho_{\text{str}}(T)$ von einem quadratischen zu einem linearen Verhalten übergeht, während $\rho_{\text{mag}}(T)$ weiterhin einer quadratischen Temperaturabhängigkeit unterliegt. Dies impliziert, daß man den zusätzlichen T^2 -Term ($\alpha_2' T^2$) der Hochtemperatur-Fits (Gl. (15)) dem Beitrag zu $\rho(T)$ zuschreibt, der von der Elektron-Magnon Streuung $\rho_{\text{mag}}(T)$ verursacht wird. In Anbetracht der Tatsache, daß bei den vorliegenden glasigen Legierungen der Übergang zwischen den asymptotischen Temperaturbereichen, in denen $\rho_{\text{str}}(T)$ einem T^2 - ($50 \leq T \leq 100 \text{ K}$) und einem T - ($200 \leq T \leq 300 \text{ K}$) Gesetz genügt, sicherlich 100 K breit ist (was sich in der endlichen Krümmung der $r'(T)$ Kurven in Abb. 4 bis etwa 200 K zeigt), ist eine eindeutige Bestimmung von $\rho_{\text{mag}}(T)$ nur dann möglich, wenn dieser Übergang vollständig abgeschlossen ist, d. h. für $T \gtrsim 200 \text{ K}$. Ein Vergleich der $\alpha_2' T^2$ -, $\alpha_2 T^2$ - und $\alpha_1' T$ -Terme mit den in den Tabellen I und II angege-

benen Werten für α_1' , α_2' und α_2 bei verschiedenen Temperaturen zeigt, daß ρ_{str} im gesamten Temperaturbereich zwischen 50 und 300 K ρ_{mag} um mindestens eine Größenordnung übersteigt und der magnetische Beitrag zu ρ leicht übersehen werden kann, wenn man bei der Analyse der Ergebnisse nicht die nötige Sorgfalt walten läßt. Die Kombination der Parameter der Terme $\alpha_2 T^2$, $\alpha_1' T$ und $\alpha_2' T^2$ der Tief- und Hochtemperatur-fits, die mit $(\rho_{\text{str}}(T) + \rho_{\text{mag}}(T))$, $\rho_{\text{str}}(T)$ und $\rho_{\text{mag}}(T)$ identifiziert werden können, erlaubt über die Verknüpfung

$$\theta_D = \frac{\pi^2}{6} \frac{\alpha_1'}{\alpha_2 - \alpha_2'} \quad (20)$$

eine Berechnung der Debye-Temperatur. Eine Zusammenstellung der mit dieser Beziehung ermittelten θ_D -Werte findet sich in Tabelle II.

Neben den Fits in den asymptotischen Temperaturbereichen sind noch zwei weitere Versuche der Datenanpassung auf der Grundlage von Gl. (19) durchgeführt worden, wobei $\rho_{\text{str}}(T)$ und $\rho_{\text{mag}}(T)$ mit den Gln. (4) und (11) zu identifizieren sind. Bevor aber die Einzelheiten dieser Fits erörtert werden, sollte man zunächst eine Abschätzung für den magnetischen Restwiderstand $\rho_{\text{mag}}(0)$ durchführen um herauszufinden, wie klein oder groß dieser Beitrag für amorphe Ferromagnete ist. Unter Zuhilfenahme bekannter Beziehungen für freie Elektronen wie $E_F = \hbar^2 k_F^2 / 2m$ und $k_F^3 = 3\pi^2 N_e / \Omega$ kann Gl. (11b) auf die Form

$$\rho_{\text{mag}}(0) = \frac{3\pi\hbar \Omega_c S^2}{16e^2 k_F^2} \left(\frac{J_{\text{sd}}}{E_F} \right)^2 J_S(2k_F) \quad (21)$$

gebracht werden. Setzt man in diese Gleichung typische Werte wie $\Omega_c = a^3 = 3^3 \text{ \AA}^3$, $S = 1$, $k_F = 1.36 \text{ \AA}^{-1}$, $J_S(2k_F) = 3.0 \text{ \AA}^{-4}$, $J_{\text{sd}} \approx 0.1 \text{ eV}$ und $E_F \approx 10 \text{ eV}$ ein, so ergibt sich für den magnetischen Restwiderstand $\rho_{\text{mag}}(0) \approx 0.1 \text{ } \mu\Omega \text{ cm}$. Dieser Wert sollte mit dem von $\rho_{\text{str}}(0)$ verglichen werden, der bei amorphen Ferromagneten von der Größenordnung $100 \text{ } \mu\Omega \text{ cm}$ ist. Dieser Vergleich und die Bemerkung in Abschnitt II über die Größenordnung des vierten Terms in Gl. (11a) zeigen, daß bei den oben erwähnten Fits der erste und der vierte Term dieser Gleichung vernachlässigt werden können. Bei dem ersten Fit-Ansatz wird der zweite Term in Gl. (11a) ebenfalls weggelassen und die $r(T)$ -Daten an die Funktion

$$r(T) = f_1(T) + a_3 T^2 \equiv f_2(T) \quad (22)$$

angepaßt, wobei $f_1(T)$ durch Gl. (9) gegeben ist. Mit den Werten der er-

mittelten Anpassungsparameter a_1 , a_2 , a_3 , $W(0)$ und θ_D können nach den Gln. (10b) und (5) der Strukturfaktor $S_0(2k_F)$ und der Fermi-Wellenvektor k_F ermittelt werden, und über die folgenden Beziehungen

$$\frac{\Delta\rho}{\rho} = \frac{2(1 - S_0(2k_F))}{S_0(2k_F)} \left[W(0) \frac{4 \times 300}{\theta_D} - 1 \right] + \frac{a_3 \times (300)^2}{S_0(2k_F)} \quad , \quad (23)$$

$$r(300K) = \frac{S_0(2k_F) + 2W(0) [1 - S_0(2k_F)] [(4 \times 300 / \theta_D) - 1] + a_3 \times (300)^2}{S_0(2k_F) + 2W(0) [1 - S_0(2k_F)] [(4 \times T_0 / \theta_D) - 1] + a_3 T_0^2} \quad , \quad (24)$$

und

$$\alpha'_1 = \frac{8W(0) [1 - S_0(2k_F)] / \theta_D}{S_0(2k_F) + 2W(0) [1 - S_0(2k_F)] [(4T_0 / \theta_D) - 1] + a_3 T_0^2} \quad , \quad (25)$$

$\Delta\rho/\rho$, $r(300\text{ K})$ und α'_1 . Die ermittelten Werte dieser Größen sind in den Tabellen III und IV den Fit-Parametern gegenübergestellt, die bei der Anpassung der Funktion $f_1(T)$ an die $r(T)$ -Daten erhalten worden sind. Dieser Vergleich zeigt, daß durch die Berücksichtigung des magnetischen Beitrags ($a_3 T^2$ -Term in Gl. (22)) in der Beziehung für den Gesamtwiderstand keine signifikanten Änderungen in den Parameterwerten für a_1 , a_2 (und somit auch für $S_0(2k_F)$ mit der Ausnahme der Legierung $\text{Fe}_{80}\text{B}_{18}\text{C}_2$, bei der a_1 und a_2 sich ändern, aber $S_0(2k_F)$ innerhalb der Fehlergrenzen unverändert bleibt), $\Delta\rho/\rho$ und $r(300\text{ K})$ auftreten, die Qualität der Fits aber erheblich verbessert wird, wie man an der um eine Größenordnung reduzierten Summe der Fehlerquadrate (χ^2) ablesen kann. Außerdem wird die Diskrepanz zwischen beobachteten und berechneten Werten für α'_1 beseitigt, und die Werte für θ_D und k_F werden so weit erniedrigt, daß sie in einem physikalisch akzeptierbaren Bereich liegen. Die weiteren wichtigen Untersuchungsergebnisse beinhalten folgendes: (i) In Übereinstimmung mit den Voraussagen des Diffraktions-Modells ist ein positiver Temperaturkoeffizient mit $2k_F$ -Werten verknüpft, die entweder deutlich kleiner oder deutlich größer als k_p sind (da keine Strukturdaten für die amorphen $\text{Fe}_{80}\text{B}_{20-x}\text{C}_x$ - und $\text{Fe}_{82}\text{B}_{18-x}\text{Ge}_x$ -Legierungen vorliegen, kann man die ermittelten $2k_F$ -Werte mit $k_p \approx 3.1\text{ \AA}^{-1}$ vergleichen, der Position des ersten Maximums der $S(k)$ -Kurve für amorphes $\text{Fe}_{80}\text{B}_{20}$ /28/; für k_p ist keine nennenswerte Verschiebung zu erwarten, wenn in $\text{Fe}_{80}\text{B}_{20}$ B teilweise durch C oder Ge ersetzt wird), und die θ_D -Werte sind nun hinreichend nahe bei der Temperatur $T^* \approx 200\text{ K}$, oberhalb der ρ_{str} eine lineare Temperaturabhängigkeit aufweist. (ii) Die Hochtemperatur- und

$f_2(T)$ -Fits ergeben etwa den gleichen Wert für den Koeffizienten des magnetischen Terms (T^2 -Term in den Gln. (15) und (22)). Ferner liegen die Werte dieser Koeffizienten in den Beziehungen für den Gesamtwiderstand $\theta' = \rho(T_0)a_3$ oder $\theta'' = \rho(T_0)\alpha_2'$ für die in dieser Arbeit untersuchten metallischen Gläser in einem Bereich von Werten für den gleichen Koeffizienten kristalliner ferromagnetischer Metalle und Legierungen /29-32/. Die in dieser Arbeit beispielsweise für $\text{Fe}_{80}\text{B}_{20}$ bestimmten Koeffizienten $\theta' = (9.1 \pm 0.3) \text{ p}\Omega \text{ cm/K}^2$ und $\theta'' = (9.8 \pm 0.5) \text{ p}\Omega \text{ cm/K}^2$ ($\rho(T_0) = (120 \pm 2) \text{ p}\Omega \text{ cm}$) stimmen ausgezeichnet mit dem für kristallines Fe beobachteten Wert $9.6 \text{ p}\Omega \text{ cm/K}^2$ /29/ überein. Diese Beobachtung bestätigt die in Abschnitt II gemachte Anmerkung, daß die eingefrorene Unordnung den kohärenten Elektron-Magnon Streubeitrag zu ρ nur unwesentlich beeinflusst.

Zur Verifizierung der theoretischen Voraussage bezüglich der relativen Bedeutung der $T^{3/2}$ - und T^2 -Terme in Gl. (11a) ist ein zweiter Fit-Ansatz probiert worden, in dem die Funktion

$$r(T) = f_1(T) + a_3 T^2 + a_4 T^{3/2} = f_2(T) + a_4 T^{3/2} \quad (26)$$

an die $r(T)$ -Daten angepaßt wurde. Zur Anpassung wird wieder ein nicht-lineares Fit-Programm verwendet, in dem alle sechs Parameter a_1 , a_2 , a_3 , a_4 , θ_D und $W(0)$ frei variieren. Diese Anpassungsprozedur konvergiert nur für einige der untersuchten Legierungen, und in diesen Fällen sind (i) alle Parameter (mit Ausnahme von a_4) völlig verschieden von denen der anderen durchgeführten Fits, (ii) die ermittelten Werte für die Debye-Temperatur unphysikalisch groß, (iii) die Koeffizienten a_4 negativ, und (iv) die Qualität der Fits schlechter, wie man den gegenüber den früheren Fits höheren Werten für die Summe der Fehlerquadrate entnehmen kann. Versuche, die $r(T)$ -Daten im Temperaturbereich von 50 bis 100 K an die Beziehung $r(T) = \alpha_0 + \alpha_2 T^2 + \alpha_3 T^{3/2}$ anzupassen, erlagen dem gleichen Mißgeschick. Neuere Untersuchungen des spezifischen elektrischen Widerstands von amorphem $\text{Fe}_{80}\text{B}_{20}$ /33/ haben auch zu unphysikalischen negativen Werten für den Koeffizienten α_3 im Temperaturbereich $20 \leq T \leq 100 \text{ K}$ geführt. Der obige experimentelle Befund deutet darauf hin, daß der $T^{3/2}$ -Term in Gl. (11a), falls überhaupt vorhanden, vernachlässigbar klein gegen den T^2 -Term ist (was impliziert, daß die konkurrierenden Beiträge zu $\rho_{\text{mag}}(T)$ der inkohärenten und elastischen Komponenten der Elektron-Magnon Streuung sich gegenseitig nahezu aufheben). Diese Schlußfolgerung steht im Widerspruch zu der theoretischen Vorhersage, daß im mittleren Temperaturbereich bei amorphen Ferromagne-

ten der $T^{3/2}$ -Term über den T^2 -Term (um mehr als zwei Größenordnungen) dominieren sollte.

Im folgenden soll die Aufmerksamkeit auf die Konzentrationsabhängigkeit der Parameter α'_1 , α'_2 , α_2 , β , a_3 und θ_D gerichtet werden (Abbn. 5 und 6 und Einschub in Abb. 4). Zum Vergleich sind in diesen Abbildungen die Ergebnisse von Magnetisierungsmessungen /34, 35, 37/ und Messungen der spezifischen Wärmekapazität /36/ mit einbezogen worden. Abb. 5 ist zu entnehmen, daß bei dem $\text{Fe}_{80}\text{B}_{20-x}\text{C}_x$ -System a_3 , α'_2 , β und μ (magnetisches Moment pro Legierungsatom bei 4.2 K und 77 K) eine bemerkenswert ähnliche Konzentrationsabhängigkeit aufweisen, die völlig verschieden ist von der für α'_1 und α_2 , die wiederum untereinander grob die gleiche funktionale Abhängigkeit von x zeigen. Dies impliziert, daß grundsätzlich zwei verschiedene physikalische Mechanismen für die Existenz der Terme in $\rho(T)$ mit den Koeffizienten (a_3 , α'_2 , β) und (α'_1 und α_2) verantwortlich sind. Die auffällige Ähnlichkeit in der Konzentrationsabhängigkeit von a_3 , α'_2 und μ tritt in dem Einschub in Abb. 3 noch deutlicher zutage, der die Skalierung von a_3 und α'_2 mit μ zeigt. Dieser Befund ist ein klarer Beleg für die Behauptung, daß die T^2 -Terme in den $f_2(T)$ - und asymptotischen Hochtemperatur-Fits rein magnetischer Natur sind. Abb. 5 würde normalerweise dazu verleiten, eine ähnliche Aussage über den logarithmischen Term in $\rho(T)$ zu machen, aber hier ist eine gewisse Reserve bei dieser Interpretation auf Grund folgender Beobachtungen geboten: (a) der Wert von β ist eine Funktion des für die Anpassung gewählten Temperaturbereichs, und (b) erstrecken sich die Messungen nicht zu hinreichend tiefen Temperaturen (mK-Bereich), wo ein Sättigungsverhalten des Widerstands zu erwarten ist und was eine Voraussetzung für eine physikalisch sinnvolle Unterscheidung zwischen den in der Literatur vorgeschlagenen Modellen zur Erklärung des Widerstandsminimum-Phänomens in metallischen Gläsern ist. Ein vorsichtigerer Standpunkt wäre der, daß bei den vorliegenden glasigen Legierungen der logarithmische Anstieg des Widerstands im Tieftemperaturbereich nicht nur allein von der strukturellen Unordnung herrührt, wie in einigen vorgeschlagenen Theorien behauptet wird, sondern daß der magnetische Zustand dieser Legierungen ebenfalls eine wesentliche Rolle spielt. Im Hinblick auf den strukturellen Ursprung der linearen Temperaturabhängigkeit von ρ bei hohen Temperaturen ($\alpha'_1 T$ -Term in Gl. (15)) deutet die große Ähnlichkeit zwischen $\alpha'_1(x)$ und $\alpha_2(x)$ darauf hin, daß die quadratische Temperaturabhängigkeit von $\rho(T)$ im mittleren Temperaturbereich hauptsächlich von der Streuung der Leitungselektronen an der strukturellen Un-

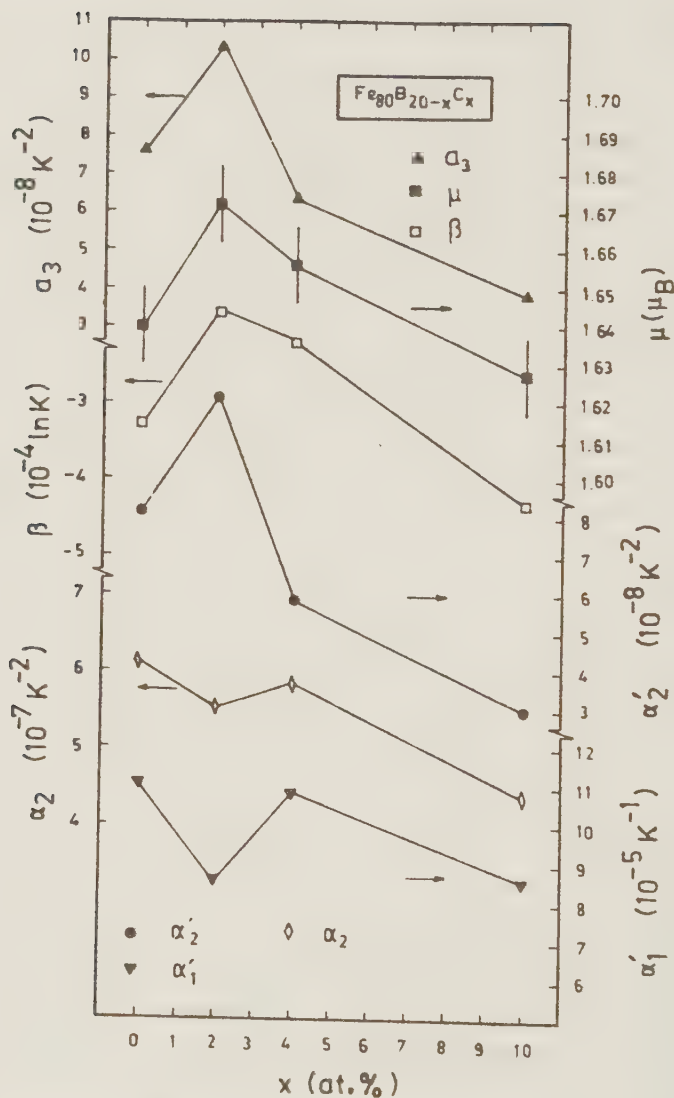


Abb. 5: Konzentrationsabhängigkeit der Koeffizienten α'_1 , α'_2 , α_2 , β , a_3 und des magnetischen Moments μ amorpher $\text{Fe}_{80}\text{B}_{20-x}\text{C}_x$ -Legierungen. Man beachte, daß die Werte für μ der Legierungen mit $x = 2$, 4 und 10 aus Referenz /34/ Angaben für $T = 77 \text{ K}$ sind, während der Wert für $\text{Fe}_{80}\text{B}_{20}$ aus Referenz /35/ das Moment bei $T = 4.2 \text{ K}$ wiedergibt.

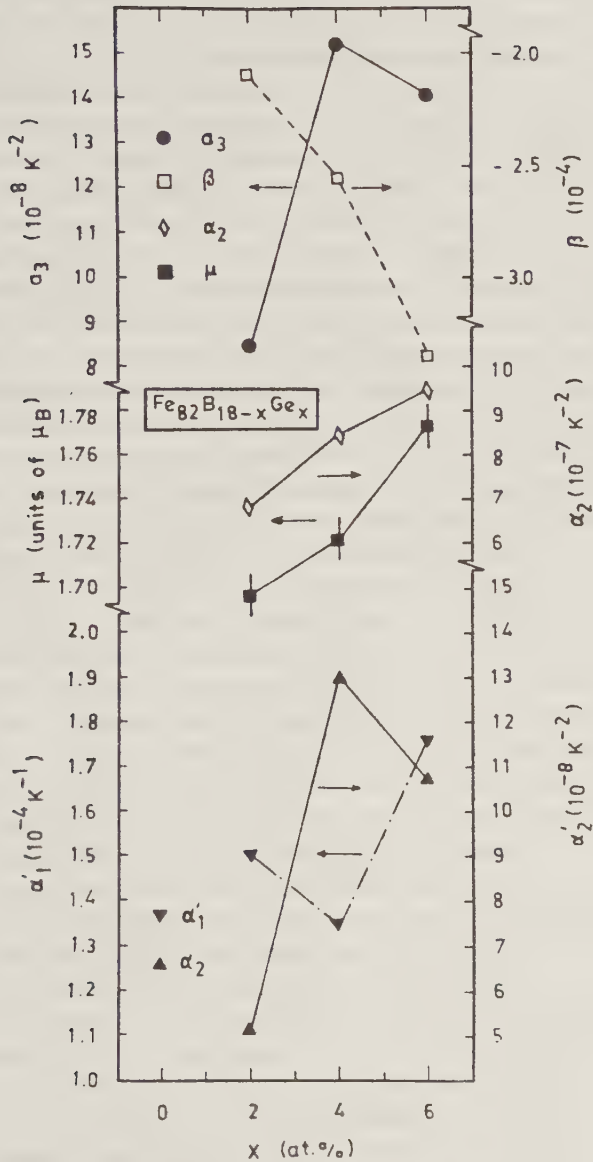


Abb. 6: Konzentrationsabhängigkeit der Koeffizienten α'_1 , α'_2 , α_2 , β , α_3 und des magnetischen Moments μ amorpher Fe₈₂B_{18-x}Ge_x-Legierungen.

ordnung verursacht wird. Trotzdem kann ein kleiner Beitrag zu diesem Term ($\alpha_2 T^2$ -Term in Gl. (14)) auf Grund von kohärenter Elektron-Magnon Streuung nicht völlig ausgeschlossen werden.

Auch bei dem amorphen $\text{Fe}_{82}\text{B}_{18-x}\text{Ge}_x$ -System weisen α_3 und α_2' eine ähnliche x-Abhängigkeit auf, die sich wiederum völlig von der für α_1' und α_2 unterscheidet (siehe Abb. 6). Dies deutet nachdrücklich auf einen gemeinsamen Ursprung (vermutlich magnetischer Natur) für die Terme in $r(T)$ mit den Koeffizienten α_3 und α_2' hin. Die Koeffizienten α_3 und α_2' skalieren allerdings hier nicht mit μ (Abb. 6), und der Koeffizient β besitzt die umgekehrte Konzentrationsabhängigkeit wie $\mu(x)$. Dies spiegelt vermutlich die unterschiedliche Natur der Substitutionsprozesse in beiden Legierungssystemen wider, da z. B. die Ersetzung von B durch C in den $\text{Fe}_{80}\text{B}_{20-x}\text{C}_x$ -Legierungen auf interstitiellen Positionen stattfindet, während dies bei Ge in dem $\text{Fe}_{82}\text{B}_{18-x}\text{Ge}_x$ -System auf substitutionellen Positionen erfolgt /37/. Bemerkenswert ist aber die Tatsache, daß alle oben diskutierten Koeffizienten für die $\text{Fe}_{82}\text{B}_{18-x}\text{Ge}_x$ -Legierungen eine Konzentrationsabhängigkeit aufweisen, die der bei den $\text{Fe}_{80}\text{B}_{20-x}\text{C}_x$ -Legierungen gefundenen entgegengesetzt ist. Im Hinblick auf die in der Einleitung vorgebrachten Argumente kann dieser Befund als Bestätigung für die durchgeführte Datenanalyse gewertet werden.

Abschließend sollen noch einige Anmerkungen zur Konzentrationsabhängigkeit der Debye-Temperatur θ_D der untersuchten glasigen Legierungen gemacht werden. Dem Einschub in Abb. 4 kann man entnehmen, daß die mit den f_2 -Fits und durch Gl. (20) bestimmten Werte für θ_D in vernünftiger Übereinstimmung sind, aber um etwa 40% kleiner als die aus Messungen der spezifischen Wärmekapazität /36/ ermittelten Werte. Einzige Ausnahme ist hier die Legierung $\text{Fe}_{80}\text{B}_{20}$, bei der die Widerstandsmessungen und Messungen der spezifischen Wärmekapazität zu nahezu identischen Ergebnissen führen. Die offensichtliche Diskrepanz zwischen den verschiedenen Sätzen von Debye-Temperaturen könnte ein Folge der Tatsache sein, daß die in Referenz /36/ bestimmten θ_D -Werte nicht die für $T = 0 \text{ K}$ repräsentieren, die eher für einen Vergleich mit aus Widerstandsmessungen ermittelten θ_D -Werten relevant sind, sondern die über das Temperaturintervall $1.5 \leq T \leq 10 \text{ K}$ gemittelten Werte. Abb. 1 in Referenz /36/ zeigt klar, daß $\theta_D(T)$ sich dem Grenzwert $\theta_D(0)$ erst für $T \lesssim 7 \text{ K}$ ($T \lesssim 10 \text{ K}$ für $\text{Fe}_{80}\text{B}_{20}$) annähert und oberhalb $T \approx 7 \text{ K}$ mit zunehmender Temperatur ansteigt. Der Mittelwert von θ_D über einen ausgedehnten Temperaturbereich ist daher unvermeidbar größer als $\theta_D(0)$.

V. Schlußfolgerungen

Der quantitative Vergleich zwischen theoretischen Voraussagen und den vorliegenden experimentellen Ergebnissen erlaubt es, folgende Schlußfolgerungen zu ziehen:

- (i) Sowohl Elektron-Ion Potentialstreuung als auch Elektron-Magnon Streuung tragen zum Widerstand bei.
- (ii) Der strukturelle Beitrag dominiert im gesamten Temperaturbereich über den magnetischen Beitrag.
- (iii) Die eingefrorene Unordnung nimmt keinen nachweisbaren Einfluß auf den kohärenten Elektron-Magnon Streubeitrag zu ρ .
- (iv) Die konkurrierenden Beiträge zu $\rho_{\text{mag}}(T)$, die von den inkohärenten und elastischen Anteilen der Elektron-Magnon Streuung verursacht werden, sind etwa von der gleichen Größenordnung, so daß der $T^{3/2}$ -Term in der Beziehung für $\rho_{\text{mag}}(T)$ vernachlässigbar klein gegen den T^2 -Term ist.
- (v) Der magnetische Zustand der untersuchten metallischen Gläser muß bei dem Versuch einer Interpretation des logarithmischen Anstiegs von ρ für $T < T_{\text{min}}$ im Rahmen der bestehenden Theorien mit einbezogen werden.

§7 Spinunordnungs-Streuung in magnetisch verdünnten metallischen

$\text{Fe}_{x_{77-x_{13}}\text{B}_{13}\text{Si}_{10}}$, $\text{Fe}_{x_{80-x_{16}}\text{B}_{16}\text{Si}_4}$ und $\text{Co}_{x_{80-x_{16}}\text{B}_{16}\text{Si}_4}$ -Gläsern

I. Einleitung

Die in Kapitel 6 dargelegten Analysen des spezifischen elektrischen Widerstands ρ Fe-reicher ferromagnetischer amorpher Legierungen haben den eindeutigen Nachweis eines magnetischen Beitrags ρ_{mag} zum Gesamtwiderstand erbracht, der im Spinwellen-Gebiet eine quadratische Funktion der Temperatur ist. Dieser experimentelle Befund steht offensichtlich im Widerspruch zu den theoretischen Ergebnissen /1-3/, die neben dem kohärenten magnetischen Beitrag (der mit T^2 variiert) einen dominanten in-kohärenten Beitrag zu ρ_{mag} voraussagen, der proportional zu $T^{3/2}$ ist. Die Gründe für diese Diskrepanzen sind vermutlich in den doch erheblich vereinfachenden Annahmen der theoretischen Arbeiten /1-3/ zu suchen, die eine Beurteilung des Erfolgs der Endergebnisse im Vergleich mit dem Experiment schwierig machen. Bei der Suche nach einer umfassenden Erklärung des vorliegenden Datenmaterials könnte aber eine Orientierung an den für kristalline Ferromagnete entwickelten Modellvorstellungen sicherlich wertvolle Anhaltspunkte für die Analyse und Interpretation des Widerstandsverhaltens amorpher Ferromagnete liefern.

Die Transporteigenschaften ferromagnetischer Materialien werden wesentlich von den Besonderheiten der Bandstruktur geprägt, die sich gegenüber nicht-magnetischen Metallen im Bereich der Fermi-Energie durch die Überlagerung eines breiten s- und eines schmalen d-Bandes mit gemeinsamer Fermi-Energie auszeichnet /4/. Wegen der Verhältnisse der effektiven Massen tragen die d-Zustände i. a. nicht direkt zum Ladungstransport bei, jedoch können sich bei stark ferromagnetischen Materialien die Wirkungsquerschnitte für die Potentialstreuung der $s\uparrow$ - und $s\downarrow$ -Elektronen in die Lochzustände des d-Bandes beträchtlich unterscheiden. Die Überlagerung von Potential- und Spin-Streuung führt dann neben den additiven Widerstandsbeiträgen der einzelnen Streumechanismen zu einem zusätzlichen (Misch-) Term zum Gesamtwiderstand, der Abweichungen von der Matthiessen'schen Regel beschreibt /4, 5/. Für die Größenordnung dieses Zusatzbeitrags ist das Verhältnis $\alpha = \rho_0^{\uparrow}/\rho_0^{\downarrow}$ der partiellen Restwiderstände der beiden s-Unterbänder wesentlich, das durch Messungen der spontanen magnetischen Widerstandsanisotropie direkt experimentell zugänglich ist. Dieses ursprünglich von Mott /6/ vorgeschlagene und hauptsächlich von Fert und Campbell /4/ ausgearbeitete Zwei-Strom-Modell hat sich bei der Erklärung der Transportphänomene kristalliner

ferromagnetischer Legierungen als außerordentlich tragfähig erwiesen. In die Interpretation des Widerstandsverhaltens amorpher Ferromagnete sind diese Modellvorstellungen bisher nicht eingeflossen, könnten aber vermutlich eine Erklärung für die in Kapitel 6 geschilderten Diskrepanzen in den experimentell gefundenen Gesetzmäßigkeiten für ρ_{mag} im Tieftemperaturbereich liefern.

Zur Vermeidung der Komplikationen, die bei stark ferromagnetischen Systemen mit dem Auftreten des Mischterms in der Beziehung für den Gesamtwiderstand verbunden sind, sollte man daher zunächst amorphe Systeme untersuchen, die im Sinne des Stoner-Kriteriums schwach ferromagnetisch sind und bei denen Abweichungen von der Matthiessen'schen Regel vernachlässigt werden können. Nur dieser Fall ist bisher auch in den theoretischen Arbeiten behandelt worden /1-3/. Geeignete Modell-Systeme für diese Untersuchungen sind verdünnte amorphe Ferromagnete mit niedrigen Curie-Temperaturen, wie sie bei den $\text{TM}_{80}\text{M}_{20}$ -Legierungen (TM = Übergangsmetall, M = Metalloid) mit Zusammensetzungen in der Nähe der Perkolationsgrenze zu finden sind. Zu diesen Modell-Systemen gehören auch die in dieser Arbeit untersuchten amorphen $(\text{Fe/Co})_x\text{Ni}_{80-x}\text{B}_{16}\text{Si}_4$ - ($x \leq 19$) und $\text{Fe}_x\text{Ni}_{77-x}\text{B}_{13}\text{Si}_{10}$ -Legierungen ($x \leq 15.4$), deren jeweilige Basislegierung $\text{Ni}_{80}\text{B}_{16}\text{Si}_4$ bzw. $\text{Ni}_{77}\text{B}_{13}\text{Si}_{10}$ Pauli-paramagnetisch ist /13, 14/, und die Substitution von einigen at% Ni durch Fe oder Co zu langreichweitiger ferromagnetischer Ordnung Anlaß gibt. Das $\rho(T)$ -Verhalten der Basislegierung kann unter bestimmten Voraussetzungen als gute Abschätzung für den nicht-magnetischen Widerstandsbeitrag der ferromagnetischen Zusammensetzungen angesehen und zur Abspaltung des magnetischen Beitrags $\rho_{\text{mag}}(T)$ benutzt werden. Dadurch eröffnet sich die Möglichkeit einer quantitativen Analyse von ρ_{mag} im Rahmen geeigneter theoretischer Modelle.

II. Ergebnisse und Analyse

In den Abbn. 1 - 3 ist die Temperaturabhängigkeit des normierten Widerstandsverhältnisses $r(T) = \rho(T)/\rho(T_0)$ (mit $T_0 = 273.15$ K) und der zugehörigen Ableitung $dr(T)/dT$ amorpher $\text{Fe}_x\text{Ni}_{80-x}\text{B}_{16}\text{Si}_4$ -, $\text{Co}_x\text{Ni}_{80-x}\text{B}_{16}\text{Si}_4$ - und $\text{Fe}_x\text{Ni}_{77-x}\text{B}_{13}\text{Si}_{10}$ -Legierungen im Temperaturbereich 1.5 - 300 K für $x \leq 19$ bzw. $x \leq 15.4$ dargestellt. Abgesehen von den kleinen Unterschieden in der Lage der Perkolationsgrenze x_c ist das Gesamtverhalten von $\rho(T)$ dieser Systeme in jeder Hinsicht sehr ähnlich und kann wie folgt charakterisiert werden: (i) die gesamte Widerstandsänderung im untersuchten Temperaturbereich nimmt mit dem Fe- (Co-) Gehalt zu und er-

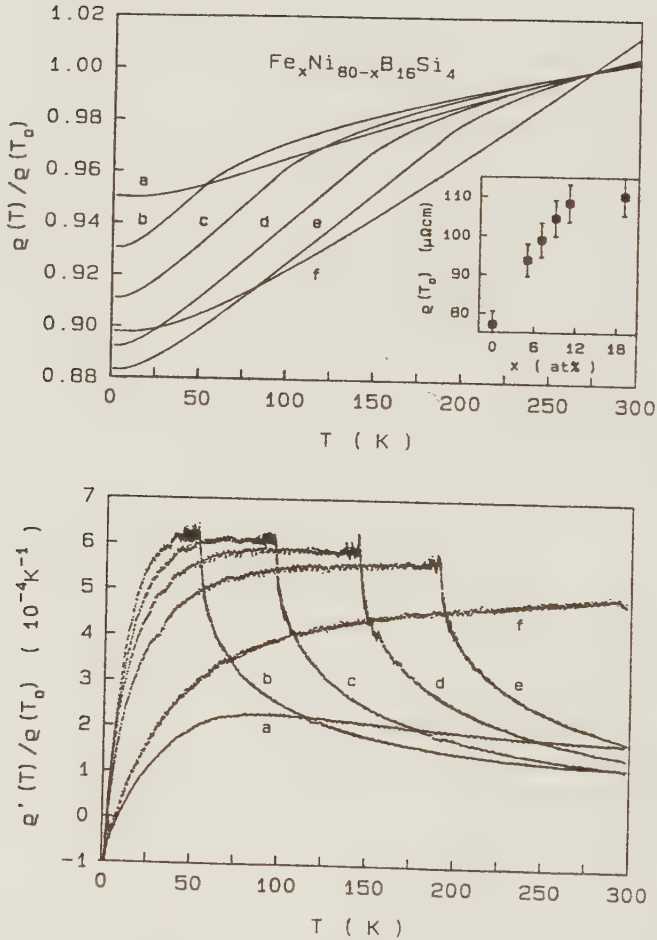


Abb. 1: Temperaturabhängigkeit des normierten Widerstandsverhältnisses $\rho(T)/\rho(T_0)$ (oben) und der zugehörigen Ableitung $\rho'(T)/\rho(T_0)$ (unten) amorpher $\text{Fe}_x\text{Ni}_{80-x}\text{B}_{16}\text{Si}_4$ -Legierungen für $x = 0$ (a), 5 (b), 7 (c), 9 (d), 11 (e) und 19 (f). Die Bezugstemperatur $T_0 = 273.15 \text{ K}$ ist die des Eispunktes. Der Einschub (oben) zeigt die Konzentrationsabhängigkeit von $\rho(T_0)$.

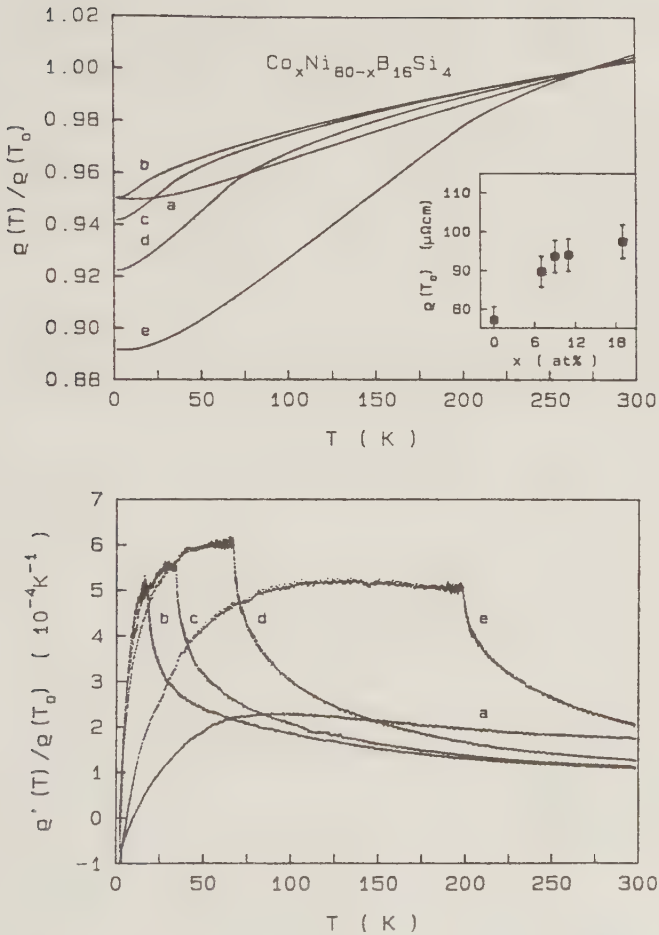


Abb. 2: Temperaturabhängigkeit des normierten Widerstandsverhältnisses $\rho(T)/\rho(T_0)$ (oben) und der zugehörigen Ableitung $\rho'(T)/\rho(T_0)$ (unten) amorpher $\text{Co}_x\text{Ni}_{80-x}\text{B}_{16}\text{Si}_4$ -Legierungen für $x = 0$ (a), 7 (b), 9 (c), 11 (d) und 19 (e). Die Bezugstemperatur $T_0 = 273.15$ K ist die des Eispunktes. Der Einschub (oben) zeigt die Konzentrationsabhängigkeit von $\rho(T_0)$.

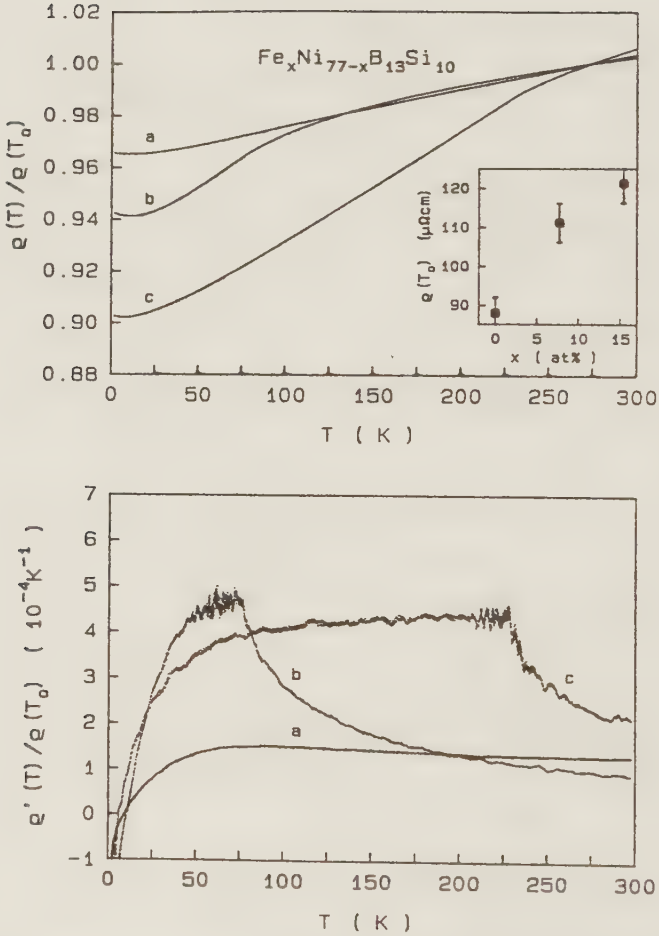


Abb. 3: Temperaturabhängigkeit des normierten Widerstandsverhältnisses $\rho(T)/\rho(T_0)$ (oben) und der zugehörigen Ableitung $\rho'(T)/\rho(T_0)$ (unten) amorpher $\text{Fe}_x\text{Ni}_{77-x}\text{B}_{13}\text{Si}_{10}$ -Legierungen für $x = 0$ (a), 7.7 (b) und 15.4 (c). Die Bezugstemperatur $T_0 = 273.15$ K ist die des Eispunktes. Der Einschub (oben) zeigt die Konzentrationsabhängigkeit von $\rho(T_0)$.

reicht bei den $B_{16}Si_4$ -Systemen für $x = 11$ at% Fe (19 at% Co) einen ungewöhnlich großen Wert von etwa 12 %, (ii) im Tieftemperaturbereich ($T < 10$ K) durchläuft der Widerstand als Funktion der Temperatur ein Widerstandsminimum, dessen Position $T_{\min}$ nur schwach mit der Zusammensetzung variiert (siehe Tabelle I), (iii) oberhalb $T_{\min}$ erfolgt der Anstieg von ρ mit zunehmender Temperatur näherungsweise nach einem Potenzgesetz T^n mit $n \approx 1.5 - 2$, das bei den ferromagnetischen Proben in der Nähe der Curie-Temperatur T_c in eine lineare Temperaturabhängigkeit übergeht, (iv) das Einsetzen der langreichweitigen ferromagnetischen Ordnung verursacht quasi eine Knickstelle im Widerstandsverlauf, oberhalb der die Steigung $d\rho/dT$ mit zunehmender Temperatur sehr schnell abfällt, und (v) ist ρ im paramagnetischen Bereich weit oberhalb der Curie-Temperatur wieder eine lineare Funktion der Temperatur mit einer Steigung, die für alle untersuchten Proben innerhalb der drei Legierungsserien näherungsweise gegen den gleichen Wert zu konvergieren scheint. In Tabelle I sind einige relevante experimentelle Größen zum Widerstandsverhalten dieser Legierungen zusammengefaßt worden.

Die für amorphe Systeme außergewöhnlich große Widerstandsänderung und die ausgeprägte Zusammensetzungsabhängigkeit kann sicherlich nicht mit dem Diffraktions-Modell /7/ allein erklärt werden, da die Elektronenstrukturen der beteiligten 3d Elemente einander sehr ähnlich sind und man erwarten kann, daß das thermische Anregungsspektrum des atomaren Streuersystems der Pauli paramagnetischen Basis-Legierungen durch die zulegierten Komponenten (Fe/Co) nicht wesentlich beeinflusst wird. Vielmehr deutet sich in der beobachteten Widerstandsanomalie bei der Curie-Temperatur schon an, daß der Magnetismus dieser verdünnten amorphen Ferromagnete, der in der Nähe der Perkulationsgrenze dramatischen Änderungen unterworfen ist, gravierenden Einfluß auf das Transportgeschehen nimmt. Die großen Widerstandsänderungen lassen schon vermuten, daß der magnetische Beitrag zum Widerstand nicht mehr, wie bei den in Kapitel 6 diskutierten konzentrierten amorphen Ferromagneten mit hohen Curie-Temperaturen, klein gegen den Beitrag der Elektron-Phonon Streuung ist und eine eindeutigere experimentelle Separation dieses Anteils zum Gesamtwiderstand möglich sein sollte.

Nur im Rahmen des Modells lokalisierter magnetischer Momente ist eine einfache Analyse des magnetischen Beitrags zum Gesamtwiderstand ohne Anpassung an ein konkretes Transportmodell möglich; allerdings muß dazu eine Annahme gemacht werden, deren Rechtfertigung erst aus dem Vergleich mit dem Experiment abgeleitet werden kann. Diese Annahme be-

Tabelle I: Zusammenstellung einiger experimenteller Größen zum Widerstandsverhalten der untersuchten amorphen $\text{Fe}_x\text{Ni}_{80-x}\text{B}_{16}\text{Si}_4$ -, $\text{Co}_x\text{Ni}_{80-x}\text{B}_{16}\text{Si}_4$ - und $\text{Fe}_x\text{Ni}_{77-x}\text{B}_{13}\text{Si}_{10}$ -Systeme. Die Dichtedaten der Legierungen sind mit der von Aso et al. /30/ für diese Klasse glasiger Metalle angegebenen Funktion berechnet worden.

Legierung	Dichte (g/cm^3)	$\rho(273.15\text{K})$ ($\mu\Omega\text{ cm}$)	$\alpha_T(273.15\text{K})$ (ppm/K)	$T_{\min}$ (K)	T_c (K)
$\text{Ni}_{80}\text{B}_{16}\text{Si}_4$	8.35	77.12 ± 3.5	125.6 ± 2	10.07 ± 0.1	-
$\text{Fe}_1\text{Ni}_{79}\text{B}_{16}\text{Si}_4$	8.33	81.76 ± 3.7	157.1 ± 2	16.12 ± 0.2	-
$\text{Fe}_2\text{Ni}_{78}\text{B}_{16}\text{Si}_4$	8.32	87.69 ± 3.9	144.5 ± 2	6.08 ± 0.2	-
$\text{Fe}_3\text{Ni}_{77}\text{B}_{16}\text{Si}_4$	8.31	88.00 ± 3.9	124.8 ± 2	7.23 ± 0.2	-
$\text{Fe}_5\text{Ni}_{75}\text{B}_{16}\text{Si}_4$	8.28	93.63 ± 4.2	125.6 ± 2	3.81 ± 0.1	54.7 ± 0.3
$\text{Fe}_7\text{Ni}_{73}\text{B}_{16}\text{Si}_4$	8.26	98.83 ± 4.4	130.7 ± 2	3.90 ± 0.1	98.0 ± 0.3
$\text{Fe}_9\text{Ni}_{71}\text{B}_{16}\text{Si}_4$	8.23	104.43 ± 4.7	162.0 ± 2	3.65 ± 0.1	146.3 ± 0.3
$\text{Fe}_{11}\text{Ni}_{69}\text{B}_{16}\text{Si}_4$	8.20	108.33 ± 4.9	208.2 ± 2	4.17 ± 0.1	191.9 ± 0.3
$\text{Fe}_{19}\text{Ni}_{61}\text{B}_{16}\text{Si}_4$	8.10	110.24 ± 4.9	483.8 ± 2	9.06 ± 0.1	> 300
$\text{Co}_1\text{Ni}_{79}\text{B}_{16}\text{Si}_4$	8.34	80.76 ± 3.6	153.0 ± 2	3.00 ± 0.1	-
$\text{Co}_3\text{Ni}_{77}\text{B}_{16}\text{Si}_4$	8.34	84.51 ± 3.8	126.2 ± 2	3.97 ± 0.1	-
$\text{Co}_5\text{Ni}_{75}\text{B}_{16}\text{Si}_4$	8.33	88.64 ± 4.0	121.8 ± 2	4.19 ± 0.1	-
$\text{Co}_7\text{Ni}_{73}\text{B}_{16}\text{Si}_4$	8.33	89.68 ± 4.0	113.4 ± 2	3.05 ± 0.1	18.0 ± 0.2
$\text{Co}_9\text{Ni}_{71}\text{B}_{16}\text{Si}_4$	8.32	93.56 ± 4.2	116.4 ± 2	2.72 ± 0.1	34.4 ± 0.3
$\text{Co}_{11}\text{Ni}_{69}\text{B}_{16}\text{Si}_4$	8.32	93.93 ± 4.2	133.2 ± 2	2.51 ± 0.1	67.3 ± 0.3
$\text{Co}_{19}\text{Ni}_{61}\text{B}_{16}\text{Si}_4$	8.29	97.44 ± 4.4	231.1 ± 2	6.38 ± 0.2	198.9 ± 0.3
$\text{Ni}_{77}\text{B}_{13}\text{Si}_{10}$	8.12	87.93 ± 4.0	130.3 ± 2	9.30 ± 0.2	-
$\text{Fe}_{7.7}\text{Ni}_{69.3}\text{B}_{13}\text{Si}_{10}$	8.02	111.12 ± 5.0	100.0 ± 2	10.50 ± 0.2	75.0 ± 0.3
$\text{Fe}_{15.4}\text{Ni}_{61.6}\text{B}_{13}\text{Si}_{10}$	7.92	121.19 ± 5.0	237.1 ± 2	6.20 ± 0.2	229.1 ± 0.3

trifft die Anwendbarkeit der Matthiessen'schen Regel, nach der sich die Widerstände addieren, die jeweils bei alleiniger Wirkung der einzelnen Streumechanismen zu erwarten wären. Bei ferromagnetischen Materialien setzt sich der Gesamtwiderstand gemäß

$$\rho(T) = \rho_0 + \rho_{ph}(T) + \rho_{mag}(T) + \Delta(T) \quad (1)$$

aus vier Anteilen zusammen, einem temperaturunabhängigen Restwiderstand ρ_0 (der auch einen magnetischen Beitrag enthalten kann), zwei temperaturabhängigen Termen $\rho_{ph}(T)$ und $\rho_{mag}(T)$ verursacht durch die Elektron-Phonon Wechselwirkung bzw. Streuung von Leitungselektronen an der Spinunordnung, und einem Term $\Delta(T)$, der Abweichungen von der Matthiessen'schen Regel berücksichtigt. Diese Zerlegung des Widerstands besagt, daß im Grenzfall $T \rightarrow 0$ K die temperaturabhängigen Terme $\rho_{ph}(T)$ und $\rho_{mag}(T)$ verschwinden. Im Rahmen des Spinunordnungs-Modells erwartet man oberhalb der Curie-Temperatur einen konstanten Beitrag $\rho_{mag}(T \gg T_c) = \text{const.}$ Wie die experimentellen [8/] und theoretischen [7/] Ergebnisse zeigen, ist der Phononenbeitrag für $T \gtrsim \theta_D$ eine lineare Funktion der Temperatur. Unter der Voraussetzung vernachlässigbarer Abweichungen von der Matthiessen'schen Regel führt dann eine Extrapolation des Hochtemperaturteils ($T \gg T_c$, $T \gtrsim \theta_D$) der experimentellen Widerstandskurven gegen $T = 0$ K zu

$$\rho^* = \rho_0 + \rho_{mag}(T \gg T_c) \quad , \quad (2)$$

woraus der paramagnetische Spinunordnungs-Widerstand $\rho_{mag}(T \gg T_c)$ ermittelt werden kann.

Ein zweites Analyseverfahren zur Separation magnetischer Widerstandsbeiträge ergibt sich aus dem Vergleich der Transportphänomene von magnetischen und isostrukturellen nicht-magnetischen Legierungen. Setzt man wieder die Gültigkeit der Matthiessen'schen Regel voraus, so kann der Gesamtwiderstand der magnetischen (m) und nicht-magnetischen (nm) Phasen durch

$$\rho^m(T) = \rho_0^m + \rho_{ph}^m(T) + \rho_{mag}^m(T) + \Delta^m(T) \quad , \quad (3a)$$

$$\rho^{nm}(T) = \rho_0^{nm} + \rho_{ph}^{nm}(T) + \Delta^{nm}(T) \quad (3b)$$

dargestellt werden. Durch Subtraktion des aus dem Experiment bekannten Restwiderstands erhält man diese Gleichungen in reduzierter Form:

$$\rho_{red}^m(T) = \rho^m(T) - \rho_0^m = \rho_{ph}^m(T) + \rho_{mag}^m(T) + \Delta^m(T) \quad , \quad (4a)$$

$$\rho_{\text{red}}^{\text{nm}}(T) = \rho^{\text{nm}}(T) - \rho_o^{\text{nm}} = \rho_{\text{ph}}^{\text{nm}}(T) + \Delta^{\text{nm}}(T) \quad . \quad (4b)$$

Aus der Differenz

$$\rho^*(T) = \rho_{\text{red}}^{\text{m}}(T) - \rho_{\text{red}}^{\text{nm}}(T) = \rho_{\text{ph}}^{\text{m}}(T) - \rho_{\text{ph}}^{\text{nm}}(T) + \Delta^{\text{m}}(T) - \Delta^{\text{nm}}(T) + \rho_{\text{mag}}(T) \quad (5)$$

der beiden Gleichungen (4a) und (4b) kann wegen $\rho_{\text{ph}}^{\text{m}}(T \rightarrow 0\text{K}) = \rho_{\text{ph}}^{\text{nm}}(T \rightarrow 0\text{K}) = 0$ aus $\rho^*(T)$ wieder der paramagnetische Spinunordnungs-Widerstand durch Extrapolation aus dem Hochtemperaturbereich gewonnen werden. Gegenüber der Extrapolationsanalyse bietet die Subtraktionsanalyse allerdings die Möglichkeit, daß gemäß Gl. (5) unter der Bedingung $(\rho_{\text{ph}}^{\text{m}}(T) - \rho_{\text{ph}}^{\text{nm}}(T)) \ll \rho_{\text{mag}}(T)$ und vernachlässigbarer Abweichungen von der Matthiessen'schen Regel zusätzlich die Temperaturabhängigkeit des magnetischen Anteils zum Gesamtwiderstand im gesamten ferromagnetischen Bereich experimentell separiert werden kann.

Die beschriebenen Analyseverfahren zur Separation magnetischer Widerstandsbeiträge sind mit Erfolg auf eine Vielzahl kristalliner Legierungen angewendet worden /9-11/. Diese Vorgehensweise hat aber bisher noch keinen Eingang in die Analyse des Widerstandsverhaltens amorpher Ferromagnete gefunden. Im folgenden Abschnitt soll nun gezeigt werden, daß diese Widerstandszerlegung auch bei amorphen Systemen zu vernünftigen Resultaten führt und somit die Möglichkeit für eine quantitative Diskussion der Ergebnisse im Rahmen theoretischer Modelle eröffnet. Bevor jedoch in der Diskussion der experimentellen Ergebnisse im Licht dieser einfachen Methode zur Abspaltung magnetischer Widerstandsbeiträge fortgefahren wird, sollten noch einige Bemerkungen zu den diesen Analyseverfahren anhaftenden Annahmen gemacht werden.

Es ist bekannt, daß der Widerstand durch Legieren in vielerlei Hinsicht beeinflusst wird. Im Grenzfall großer Verdünnung stören die Verunreinigungen lokal die "ideale" amorphe Struktur der Basis-Legierung und tragen dementsprechend zum Restwiderstand bei. Jenseits des Grenzfalls großer Verdünnung kann durch Legieren die Elektronen-Bandstruktur erheblich geändert und damit Parameter beeinflusst werden, die teilweise den Widerstand der Basis-Legierung bestimmen. Insbesondere bei amorphen Legierungen können kleine Änderungen des Fermi-Wellenvektors k_F zu drastischen Veränderungen des nicht-magnetischen Untergrundbeitrags Anlaß geben und sogar das Vorzeichen des Temperaturkoeffizienten α_T umkehren /7, 8/. Außerdem wird Legieren häufig von Änderungen der elastischen Eigenschaften und daraus resultierenden Modifikationen des Phononenspektrums begleitet, was sich ebenfalls im Verhalten des "idealen" Wi-

derstands niederschlägt. Im Gegensatz zu kristallinen Metallen, bei denen die (nicht-magnetische) reduzierte Widerstandsfunktion für $\rho(T)/\rho(\theta_D)$ durch eine Kurve darstellbar ist, ist die Situation bei amorphen Metallen wegen der Abwesenheit einer solchen universellen Verknüpfung komplizierter.

Wie schon erwähnt, kann die zuletzt genannte Möglichkeit bei den vorliegenden Legierungssystemen im Hinblick auf an diesen Legierungen durchgeführten Messungen der spezifischen Wärmekapazität [12] ausgeschlossen werden. Diese Untersuchungen haben gezeigt, daß sich wegen der Unabhängigkeit der Debye-Temperatur θ_D von der Zusammensetzung die Details des Phononen-Spektrums über den in der vorliegenden Arbeit betrachteten Konzentrationsbereich nicht wesentlich ändern. Eine Einflußnahme auf den Widerstand der Basis-Legierung durch Legieren ist daher nur über eine Verschiebung des Fermi-Wellenvektors k_F zu erwarten. Im Rahmen der Näherung freier Elektronen hängt diese Verschiebung von k_F gemäß $k_F \approx k_F^0 [1 - (x/3)(\Delta Z/Z_0)]$ von der Differenz $\Delta Z = Z_0 - Z$ der effektiven Valenz zwischen Wirt (Z_0 ; $\text{Ni}_{80}\text{B}_{16}\text{Si}_4$ bzw. $\text{Ni}_{77}\text{B}_{13}\text{Si}_{10}$) und Verunreinigung (Z ; Fe, Co) ab. Somit ist die Anwendung der Subtraktionsanalyse auf kleine Fe- bzw. Co-Konzentrationen beschränkt, wobei der Konzentrationsbereich für das a-Co-Ni-System größer sein sollte als bei den a-Fe-Ni-Systemen, was aber letztendlich den experimentellen Daten entnommen werden muß.

Bei der praktischen Durchführung der dargelegten Analysen des magnetischen Beitrags zum Widerstand ergeben sich bei den amorphen Legierungen gegenüber kristallinen Systemen einige Komplikationen, die eine Bestimmung von ρ_{mag} mit vergleichbarer Genauigkeit erschweren. Zum einen wird bei allen untersuchten Proben im Tieftemperaturbereich ($T < 10 \text{ K}$) ein zusätzlicher Streumechanismus aktiv, der zu einer Erhöhung des Widerstands mit fallender Temperatur führt, und zum anderen zeigen die experimentellen Ergebnisse, daß bis weit in den paramagnetischen Bereich hinein temperaturabhängige magnetische Beiträge zum Gesamtwiderstand wirksam sind. Somit unterliegen sowohl die Ermittlung der Restwiderstände, als auch die Extrapolation aus dem Hochtemperaturbereich einer gewissen Unsicherheit.

Wegen der kleinen Änderungen des Widerstands unterhalb des Minimums ist der Restwiderstand in guter Näherung durch den Wert $\rho(T_{\text{min}})$ gegeben. Problematischer ist hier die Extrapolation aus dem Hochtemperaturbereich. Während die Ableitungen $r'(T) = \rho'(T)/\rho(T_0)$ für die Zusammensetzungen mit $x \leq 7$ ($x \leq 9$) beim $\text{Fe}_x\text{Ni}_{80-x}\text{B}_{16}\text{Si}_4$ - ($\text{Co}_x\text{Ni}_{80-x}\text{B}_{16}\text{Si}_4$ -)

System in der Umgebung von $T = 300$ K nahezu identisch und konstant sind (d. h. $\rho \sim T$), weist $r'(T)$ der Proben mit mehr Fe (Co) bei Raumtemperatur noch eine ausgeprägte Dynamik auf (siehe Abb. 1 und 2). Allerdings zeigen die experimentellen Ergebnisse eine Konvergenz der Ableitung dieser Proben zu den Werten von $r'(T)$ für $x = 5$ ($x = 7$). Daher kann sicherlich in guter Näherung $r'(T)$ für $x > 7$ ($x > 9$) linear auf den Wert der Ableitung für $x = 5$ ($x = 7$) extrapoliert werden. Oberhalb des Schnittpunktes werden die Widerstandskurven linear mit der Steigung der Zusammensetzung mit $x = 5$ ($x = 7$) fortgesetzt. Die Extrapolation dieser Geraden nach $T = 0$ K liefert dann den zweiten zur Ermittlung von $\rho_{\text{mag}}(T \gg T_c)$ benötigten Wert. Wie ein Blick auf Abb. 3 zeigt, ist die Sachlage bei dem $\text{Fe}_x\text{Ni}_{77-x}\text{B}_{13}\text{Si}_{10}$ -System ähnlich, und man ist bei der Zusammensetzung mit $x = 15.4$ at%Fe zur Bestimmung von $\rho_{\text{mag}}(T \gg T_c)$ ebenfalls auf eine Extrapolation der Ableitung $r'(T)$ zu höheren Temperaturen angewiesen. Der bei dem Subtraktionsverfahren verbleibende Offset bei $T = 0$ K wird durch eine Analyse des asymptotischen Tieftemperaturverhaltens von ρ_{mag} bestimmt.

Abb. 4 zeigt den mit der Extrapolationsanalyse ermittelten konstanten paramagnetischen Widerstandsbeitrag $\rho_{\text{mag}}(T \gg T_c)$ der beiden untersuchten B_{16}Si_4 -Legierungssysteme als Funktion der Fe- bzw. Co-Konzentration. Die eingezeichneten Fehlerbalken ergeben sich aus dem absoluten Fehler des spezifischen elektrischen Widerstands und der Streuung des über die Extrapolations- und Subtraktionsanalyse bestimmten paramagnetischen Spinunordnungs-Widerstands. Bei beiden B_{16}Si_4 -Systemen ist $\rho_{\text{mag}}(T \gg T_c)$ nahezu linear von der Konzentration der jeweiligen zulegierten zweiten 3d Komponente (Fe, Co) abhängig mit einer Steigung von $1.03 \mu\Omega \text{ cm/at\%Fe}$ bzw. $0.49 \mu\Omega \text{ cm/at\%Co}$. Nimmt man bei dem $\text{B}_{13}\text{Si}_{10}$ -System ebenfalls eine lineare x -Abhängigkeit für $\rho_{\text{mag}}(T \gg T_c)$ an (auf die wegen der zwei nur vorliegenden Meßpunkte nicht mit Sicherheit geschlossen werden kann), so ergibt sich hier mit $0.90 \mu\Omega \text{ cm/at\%Fe}$ eine Steigung, die mit dem für das $\text{Fe}_x\text{Ni}_{80-x}\text{B}_{16}\text{Si}_4$ -System ermittelten Wert in guter Übereinstimmung ist. In jedem Fall weicht der experimentell bestimmte Zuwachs von $\rho_{\text{mag}}(T \gg T_c)$ mit x nur wenig von den Werten ab, die von den kristallinen Metallen /15, 16/ Fe ($\sim 0.8 \mu\Omega \text{ cm/at\%Fe}$) und Co ($\sim 0.5 \mu\Omega \text{ cm/at\%Co}$) zu erwarten wären (für kristallines Ni beträgt der analoge Zuwachs $\sim 0.14 \mu\Omega \text{ cm/at\%Ni}$).

Die Ergebnisse der Subtraktionsanalyse sind in den Abbn. 5 und 6 dargestellt, die den Widerstandszuwachs von ρ_{mag} mit der Temperatur für alle drei untersuchten amorphen Legierungssysteme zeigen. Die Pauli-pa-

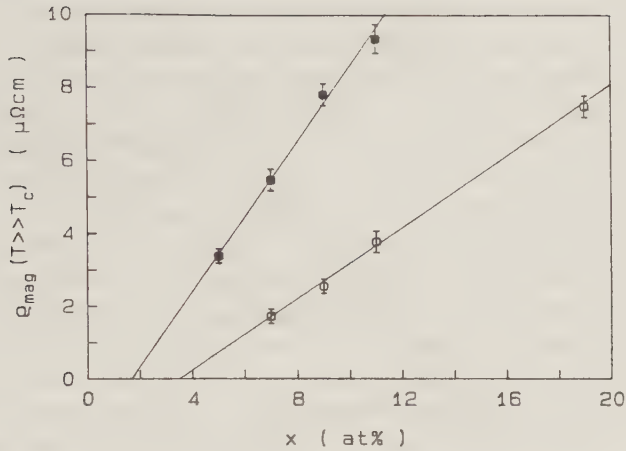


Abb. 4: Konzentrationsabhängigkeit des paramagnetischen Spinunordnungs-Widerstands $\rho_{\text{mag}}(T \gg T_c)$ amorpher $\text{Fe}_x\text{Ni}_{80-x}\text{B}_{16}\text{Si}_4$ (geschlossene Kreise) und $\text{Co}_x\text{Ni}_{80-x}\text{B}_{16}\text{Si}_4$ (offene Kreise) Legierungen. Die durchgehenden Kurven sind die für $\rho_{\text{mag}}(T \gg T_c, x)$ ermittelten Regressionsgeraden.

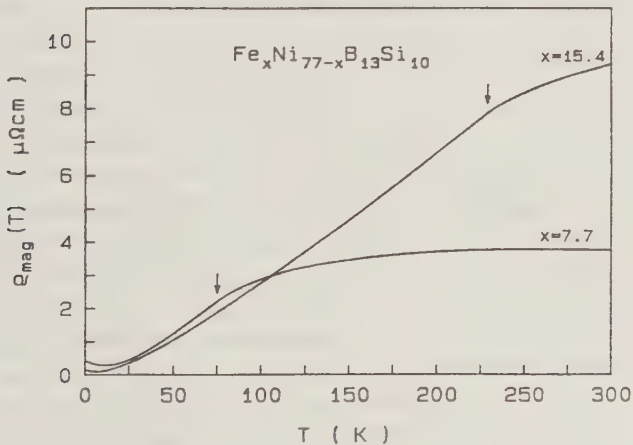


Abb. 5: Temperaturabhängigkeit des separierten magnetischen Widerstandszuwachses $\rho_{\text{mag}}(T)$ amorpher $\text{Fe}_x\text{Ni}_{77-x}\text{B}_{13}\text{Si}_{10}$ -Legierungen. Die eingezeichneten Pfeile kennzeichnen die jeweilige Curie-Temperatur.

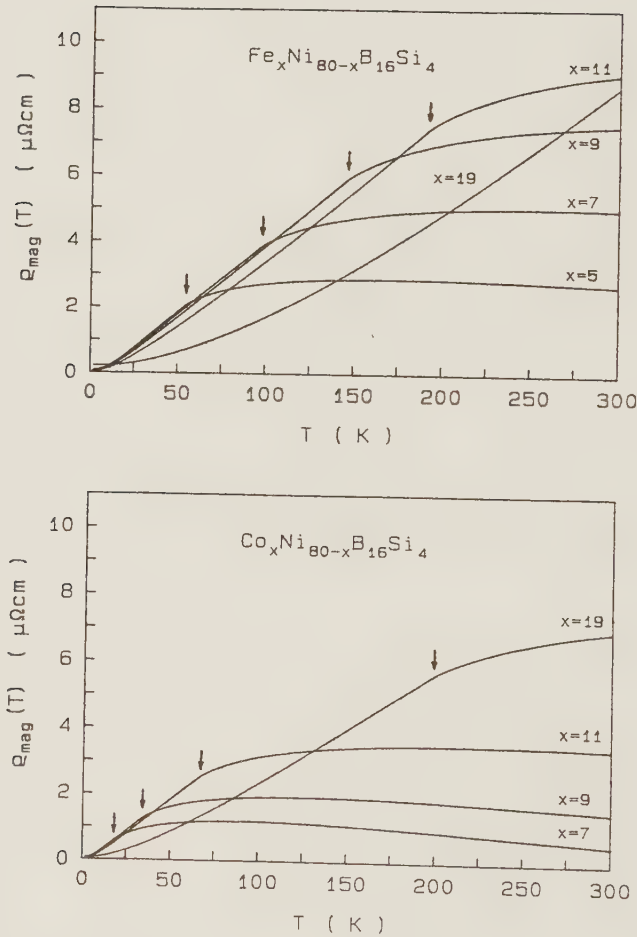


Abb. 6: Temperaturabhängigkeit des separierten magnetischen Widerstandszuwachses $\rho_{\text{mag}}(T)$ amorpher $\text{Fe}_x\text{Ni}_{80-x}\text{B}_{16}\text{Si}_4$ - (oben) und $\text{Co}_x\text{Ni}_{80-x}\text{B}_{16}\text{Si}_4$ (unten) Legierungen. Die eingezeichneten Pfeile kennzeichnen die jeweilige Curie-Temperatur.

ramagnetischen Zusammensetzungen $\text{Ni}_{80}\text{B}_{16}\text{Si}_4$ /13/ und $\text{Ni}_{77}\text{B}_{13}\text{Si}_{10}$ /14/ dienen jeweils als nicht-magnetische Basis-Legierung. Die Kurven in den Abbn. 5 und 6 zeigen eine ausgeprägte Änderung in der Steigung $d\rho_{\text{mag}}/dT$ bei der ferromagnetischen Ordnungstemperatur T_c , die der Temperatur entsprechen sollte, bei der die Ableitung dieser Kurven ihr Maximum erreicht. Ein Sättigungsverhalten von ρ_{mag} ist erst weit oberhalb der Ordnungstemperatur zu beobachten. Hier sind die Kurven im wesentlichen flach, und es gibt keine Anzeichen für einen temperatur- oder konzentrationsabhängigen Streumechanismus oberhalb $T \approx 2T_c$, der in diesem Temperaturbereich nicht durch die Temperaturabhängigkeit der Basis-Legierung berücksichtigt werden kann. Der bei kleinen Fe- bzw. Co-Konzentrationen zu beobachtende leichte Abfall von ρ_{mag} mit steigender Temperatur für $T > T_c$ ist nicht auf Abweichungen von der Matthiessens'schen Regel, sondern eher auf das Widerstandsverhalten der Basis-Legierung zurückzuführen (Abbn. 1 und 2), die bei Raumtemperatur einen höheren Temperaturkoeffizienten als die ferromagnetischen Zusammensetzungen aufweist. Wie an dem Anwachsen von ρ_{mag} in dem Temperaturintervall zwischen T_c und dem flachen Bereich der Kurven deutlich wird, lassen sich bis weit in den paramagnetischen Bereich hinein kurzreichweitige magnetische Ordnungszustände nachweisen. Unterhalb T_c ist ρ_{mag} in guter Näherung eine lineare Funktion der Temperatur, wobei die Steigung B (siehe Tabelle II) innerhalb der untersuchten Systeme kaum mit der Zusammensetzung variiert. Eine sorgfältige Analyse der Temperaturabhängigkeit von ρ_{mag} im Tieftemperaturbereich zeigt, daß das asymptotische Verhalten von ρ_{mag} für $T \rightarrow 0$ K durch ein $T^{3/2}$ -Potenzgesetz zu beschreiben ist, dessen Koeffizient A (siehe Tabelle II) mit zunehmendem Fe- bzw. Co-Gehalt kleiner wird. Die Größenordnung der ermittelten Koeffizienten A und B ist vergleichbar mit denen kristalliner verdünnter ferromagnetischer Legierungen /9-11/. Aus einem quantitativen Vergleich der gefundenen Gesetzmäßigkeiten für $\rho_{\text{mag}}(T)$ und der Konzentrationsabhängigkeit und Größenordnung von $\rho_{\text{mag}}(T \gg T_c)$, A und B mit theoretischen Modellen sollten sich wertvolle Rückschlüsse über die Natur der vorliegenden Streumechanismen ziehen lassen.

Tabelle II: Zusammenstellung der die untersuchten $\text{FeNi}_{80-x}\text{B}_{16}\text{Si}_4$ -, $\text{CoNi}_{80-x}\text{B}_{16}\text{Si}_4$ - und $\text{FeNi}_{77-x}\text{B}_{13}\text{Si}_{10}\text{-Si-}$ Systeme charakterisierenden relevanten magnetischen und elektrischen Größen. Die mittleren lokalen magnetischen Momente μ , μ_{Fe} und μ_{Ni} des $\text{FeNi}_{80-x}\text{B}_{16}\text{Si}_4$ -Systems sind Ref. /20/ entnommen (die in eckigen Klammern stehenden Zahlenwerte sind extrapolierte Daten). Bei dem $\text{CoNi}_{80-x}\text{B}_{16}\text{Si}_4$ -System sind die mittleren lokalen magnetischen Momente μ_{Co} und μ_{Ni} durch die Verknüpfung von μ /13/ und $\rho_{\text{mag}}(T \gg T_c)$ berechnet worden (siehe Text), während die Werte für μ_{Fe} und μ_{Ni} des $\text{FeNi}_{77-x}\text{B}_{13}\text{Si}_{10}$ -Systems mit den Ref. /14/ entnommenen Zahlenangaben für μ und des effektiven Hyperfeinfeldes unter Verwendung der in Ref. /20/ angegebenen Kopplungsparameter abgeschätzt worden sind.

Legierung	μ/TM (μ_B)	$\mu_{\text{Fe,Co}}$ (μ_B)	μ_{Ni} (μ_B)	D (meVÅ ²)	$\rho_{\text{mag}}(T \gg T_c)$ ($\mu\Omega \text{ cm}$)		$a_3(2k_F)$		$\rho_{\text{mag}}(0)$ ($\mu\Omega \text{ cm}$)	B (nΩ cm/K)	A (nΩ cm/K ^{3/2})	
							exp	ber			exp	ber
$\text{Fe}_{5}\text{Ni}_{75}\text{B}_{16}\text{Si}_4$	0.215	1.80	0.109	24	3.39 ± 0.2	4.0	5.8	1.1	43.5 ± 1.2 (35-54K)	6.05 ± 0.19 (11-26K)	2.83	
$\text{Fe}_{7}\text{Ni}_{73}\text{B}_{16}\text{Si}_4$	0.30	1.84	0.152	35	5.49 ± 0.3	2.4	4.4	1.5	42.9 ± 1.2 (60-97K)	5.65 ± 0.17 (10-30K)	1.58	
$\text{Fe}_{9}\text{Ni}_{71}\text{B}_{16}\text{Si}_4$	0.38	1.87	0.191	42	7.82 ± 0.3	1.9	3.7	2.0	44.8 ± 1.2 (90-145K)	5.28 ± 0.16 (8-30K)	1.26	
$\text{Fe}_{11}\text{Ni}_{69}\text{B}_{16}\text{Si}_4$	0.46	1.88	0.234	51	9.34 ± 0.3	1.8	3.2	2.6	45.6 ± 1.2 (140-191K)	4.26 ± 0.13 (11-34K)	1.01	
$\text{Fe}_{19}\text{Ni}_{61}\text{B}_{16}\text{Si}_4$	[0.79]	[1.88]	[0.45]	[86.4]	[16.1]	-	2.0	6.2	—	1.74 ± 0.09 (66-202K)	0.64	

Tabelle II: Fortsetzung

Legierung	μ/TM (μ_B)	$\mu_{\text{Fe,Co}}$ (μ_B)	μ_{Ni} (μ_B)	D (meVÅ ²)	ρ_{mag} (I >> I _c) ($\mu\Omega$ cm)	a_3 (2k _F) exp ber	ρ_{mag} (0) ($\mu\Omega$ cm)	B (nΩ cm/K)	A (nΩ cm/K ^{3/2}) exp ber
Co ₇ Ni ₇₃ B ₁₆ Si ₄	0.096	0.972	0.012	21.5	1.72±0.2	17.9 17.9	11.2	41.7±1.2 (14-18K)	7.93±0.22 (6-14K) 4.77
Co ₉ Ni ₇₁ B ₁₆ Si ₄	0.14	1.062	0.023	26	2.55±0.2	12.0 8.1	1.0	42.5±1.2 (22-34K)	7.56±0.20 (5-17K) 3.51
Co ₁₁ Ni ₆₉ B ₁₆ Si ₄	0.20	1.22	0.036	34	3.78±0.3	8.0 6.5	1.4	40.2±1.2 (35-67K)	6.62±0.19 (5-17K) 2.31
Co ₁₉ Ni ₆₁ B ₁₆ Si ₄	0.41	1.228	0.155	68.5	7.49±0.3	3.9 2.8	2.8	33.9±1.2 (140-198K)	2.43±0.11 (25-71K) 0.79
Fe _{7.7} Ni _{69.3} B ₁₃ Si ₁₀	0.177	1.715	0.006	40	3.82±0.3	5.5 12.2	1.3	38.7±0.5 (60-75K)	3.49±0.13 (28-55K) 1.97
Fe _{15.4} Ni _{61.6} B ₁₃ Si ₁₀	0.581	1.731	0.294	59	10.74±0.5	2.0 2.6	3.6	40.7±0.5 (180-225K)	2.95±0.12 (11-46K) 0.93

III. Diskussion

Die Ähnlichkeit in der beobachteten Temperatur- und Konzentrationsabhängigkeit von ρ_{mag} der in dieser Arbeit untersuchten amorphen Fe-Ni- und Co-Ni-Legierungssysteme mit vergleichbaren kristallinen ferromagnetischen Legierungen deutet auf einen gemeinsamen Ursprung für potentiell signifikante Elektronen-Streumechanismen hin, so daß man bei der Suche nach einer einfachen umfassenden Erklärung des vorliegenden Datenmaterials auf bewährte theoretische Modelle zurückgreifen kann. Schon die ungefähre Übereinstimmung des paramagnetischen Widerstandsbeitrags pro at% Fe oder Co in den amorphen Legierungen mit dem von kristallinem Fe bzw. Co /15, 16/ zeigt, daß die eingefrorene Unordnung die dominierenden magnetischen Streumechanismen nur unwesentlich beeinflusst. Doch bevor der separierte magnetische Widerstandsbeitrag der Proben mit Zusammensetzungen oberhalb der Perkulationsgrenze x_c im Rahmen theoretischer Modelle genauer analysiert wird, sollte zunächst die Temperaturabhängigkeit des Widerstands der Pauli-paramagnetischen Basis-Legierungen $\text{Ni}_{80}\text{B}_{16}\text{Si}_4$ und $\text{Ni}_{77}\text{B}_{13}\text{Si}_{10}$ kurz diskutiert werden.

Der Widerstandsverlauf von $\text{Ni}_{80}\text{B}_{16}\text{Si}_4$ (Abb. 1) zeigt das für nicht-magnetische amorphe Legierungen typische Verhalten (im folgenden wird nur die $\rho(T)$ -Abhängigkeit dieser Legierung exemplarisch behandelt, da die Analyse des Widerstandsverhaltens von $\text{Ni}_{77}\text{B}_{13}\text{Si}_{10}$ annähernd zu den gleichen Ergebnissen und Schlußfolgerungen führt). Die relative Widerstandsänderung im untersuchten Temperaturbereich beträgt etwa 5%. Im Tieftemperaturbereich durchläuft ρ als Funktion der Temperatur ein Minimum ($T_{\text{min}} \approx 9.9$ K), gefolgt von einem nahezu quadratischen Anstieg ($24 \leq T \leq 50$ K), der bei höheren Temperaturen in ein lineares Verhalten ($T \gtrsim 250$ K) übergeht. Der s-förmige Kurvenverlauf wird besonders in der Ableitung $d\rho(T)/dT$ deutlich, die bei mittleren Temperaturen ein Maximum ($T_{\text{max}} \approx 90$ K) aufweist. Eine Analyse des asymptotischen Widerstandsverhaltens

$$r(T) = \begin{cases} a_0 + a_2 T^2 & \text{für } T \ll \theta_D \\ a'_0 + a'_1 T & \text{für } T \gtrsim \theta_D \end{cases}$$

im Rahmen des in Kapitel 6 diskutierten Modells von Nagel /17/ für die Temperaturabhängigkeit des Strukturfaktors zeigt, daß die diesem Modell zugrundeliegende elastische (Hochtemperatur-) Näherung im Tieftemperaturbereich nicht alle wesentlichen Streuprozesse erfaßt. Beispielsweise ist die aus den Koeffizienten a'_1 und a_2 ermittelte Debye-Temperatur

$$\theta_D = \frac{\pi^2}{6} \frac{a_1'}{a_2} = \frac{\pi^2}{6} \frac{1.765 \times 10^{-4}}{2.029 \times 10^{-6}} \text{ K} = 143 \text{ K}$$

etwa um den Faktor zwei kleiner als der entsprechende aus Untersuchungen der spezifischen Wärmekapazität dieser Legierung /12/ bestimmte Wert $\theta_D = 311 \text{ K}$. Der Einfluß inelastischer Streuprozesse im Tieftemperaturbereich, in dem die Anregungsenergien für Elektronen und Phononen von gleicher Größenordnung sind, ist nicht mehr vernachlässigbar und führt zu Abweichungen von der von Nagel /17/ angegebenen Beziehung für den Widerstandsstrukturfaktor. Ausgehend von Baym's Formel /18/ für den spezifischen elektrischen Widerstand haben Cote und Meisel /7/ in einer allgemeineren Theorie zum $\rho(T)$ -Verhalten nicht-magnetischer amorpher Metalle den dynamischen Strukturfaktor systematisch entwickelt und gezeigt, daß unter der Annahme eines Debye'schen Phononenspektrums die Berücksichtigung von Ein-Phononen Prozessen schon für eine quantitative Beschreibung von $\rho(T)$ amorpher $\text{Ni}_{100-x}\text{P}_x$ -Legierungen, die der hier untersuchten $\text{Ni}_{80}\text{B}_{16}\text{Si}_4$ Probe sehr ähnlich sind, ausreicht. Auf eine Anpassung der von Cote und Meisel /7/ abgeleiteten Beziehung für $\rho(T)$ an die experimentellen Daten ist hier verzichtet worden, da dies nur mit erheblichem numerischen Aufwand möglich ist und wegen der Korrespondenz im Widerstandsverhalten von $\text{Ni}_{80}\text{B}_{16}\text{Si}_4$ und $\text{Ni}_{100-x}\text{P}_x$ für bestimmte x keine neuen Informationen zu erwarten sind.

Der magnetische Beitrag ρ_{mag} zum Widerstand amorpher Ferromagnete ist von mehreren Autoren /1-3/ theoretisch untersucht worden. Richter et al. /1, 2/ haben im Rahmen des Spinunordnungs-Modells den magnetischen Widerstandsbeitrag $\rho_{\text{mag}}(T)$ eines amorphen Heisenberg-Ferromagneten sowohl für tiefe als auch für hohe Temperaturen unter Anwendung der Spinwellen- (SWA) bzw. der Molekularfeld-Näherung (MFA) berechnet. Allerdings haben diese Autoren nur den homogenen Fall eines einkomponentigen amorphen Ferromagneten behandelt, der nur bedingt auf die vorliegenden quasi-binären Systeme anwendbar ist. Im Rahmen dieser Arbeit sind daher die von Richter et al. /1, 2/ abgeleiteten Beziehungen für $\rho_{\text{mag}}(T)$ nach einem Vorschlag von Herzer /19/ durch die Einbeziehung statischer Spininhomogenitäten auf mehrkomponentige amorphe Ferromagnete verallgemeinert worden. Es zeigt sich, daß diese allgemeineren Beziehungen

$$\rho_{\text{mag}}^{\text{SWA}}(T) = \rho_0^c \left\{ \langle S_{\text{ic}}^2 \rangle a_3 (2k_F)^2 \left[1 + \frac{\Gamma(3/2) \zeta(3/2)}{4\pi^2 \langle S_{\text{ic}}^2 \rangle} \left(\frac{a^2 k_B T}{D} \right)^{3/2} \right] + \frac{\pi^2}{3} \langle S_{\text{ic}}^2 \rangle \left(\frac{k_B T}{2k_F^2 D} \right)^2 \right\}, \quad (6)$$

$$\rho_{\text{mag}}^{\text{MFA}}(T) = \rho_0^c \left\{ \langle S_{iT}^z \rangle^2 a_3(2k_F) + \langle S_i(S_i+1) \rangle_c - \langle S_{iT}^z \rangle \langle (S_{iT}^z + 1) \rangle_c + \langle G_i^{\text{corr}}(T) \rangle_c \right\}, \quad (7)$$

mit

$$\rho_0^c = \frac{3\pi}{2} \frac{m\Omega_c}{e^2 \hbar E_F} J_{\text{sd}}^2, \quad a_n(2k_F) = (n+1) \int_0^1 d\left(\frac{q}{2k_F}\right) \left(\frac{q}{2k_F}\right)^n a_m(q),$$

und

$$G_i^{\text{corr}}(T) = \frac{\beta \hbar_i \langle S_{iT}^z \rangle}{\cosh(\beta \hbar_i) - 1} - \frac{2 \langle S_{iT}^z \rangle}{\exp(\beta \hbar_i) - 1}$$

sich in ihrer Struktur nicht von den Ergebnissen der Richter-Gruppe unterscheiden (vgl. mit Gl. (11a) in Kapitel 6), aber einige auftretende physikalische Größen eine andere Bedeutung erhalten. In diesen Ausdrücken bezeichnet S_i^z die z-Komponente eines Spins S_i am Ort R_i , und $\langle \dots \rangle_T$ bzw. $\langle \dots \rangle_c$ symbolisieren den thermischen Erwartungswert und das Konfigurationsmittel. Desweiteren bezeichnen D die über die Magnonen-Dispersionsrelation $\hbar \omega_q = Dq^2$ definierte Spinwellen-Steifigkeitskonstante, Γ und ζ die Gamma- bzw. Riemann'sche Zeta-Funktion, $\Omega_c = a^3$ das atomare Volumen, k_F und E_F den Fermi-Wellenvektor und die Fermi-Energie, J_{sd} den mittleren Wert des sd-Austauschintegrals, und m , e und k_B ($\beta = 1/(k_B T)$) haben ihre übliche Bedeutung. Die räumlichen Fluktuationen der magnetischen Momente kommen in der Größe $a_3(2k_F)$ zum Ausdruck, die ein gewichtetes Integral über den longitudinalen Anteil des statischen magnetischen Strukturfaktors

$$a_m(q) = \frac{1}{N} \sum_{i,j} \frac{S_i S_j}{\langle S_{iT}^z \rangle} \exp(-iq(R_i - R_j)) - N \delta_{q,0}$$

ist (für den homogenen Fall $S_i = S_j = S$ reduziert sich $a_m(q)$ auf den statischen geometrischen Strukturfaktor $a(q)$). In der im Rahmen der Molekularfeldnäherung abgeleiteten Beziehung (Gl. (7)) ist das effektive lokale Austauschfeld $H_{\text{ex}}(R_i)$, mit dem $\hbar_i$ über $\hbar_i = g\mu_B H_{\text{ex}}(R_i)$ verknüpft ist, noch nicht näher spezifiziert. Beiden Hoch- und Tieftemperaturausdrücken gemeinsam ist der magnetische Restwiderstand

$$\rho_{\text{mag}}(0) = \rho_0^c a_3(2k_F) \langle S_{iT}^z \rangle^2, \quad (8)$$

der auf die elastischen Zwei-Zentren Beiträge zurückzuführen ist, wie durch das Auftreten des gemittelten statischen magnetischen Strukturfaktors $a_3(2k_F)$ angedeutet wird. Im paramagnetischen Bereich ($T \gg T_c$)

ergibt sich aus Gl. (7) ein konstanter magnetischer Widerstandsbeitrag

$$\rho_{\text{mag}}(T \gg T_c) = \rho_o^c \langle S_i(S_i+1) \rangle_c, \quad (9)$$

der keine strukturellen Informationen mehr enthält, da im asymptotischen Fall ($T \gg T_c$) die räumlichen Korrelationen der Spins vernachlässigt werden können und die Streuung der Leitungselektronen an magnetischen Atomen im wesentlichen Ein-Platz Charakter hat.

Die Gln. (6) und (7) beschreiben den spezifischen elektrischen Widerstand als Funktion magnetischer Größen. Nach Gl. (9) steckt die Konzentrationsabhängigkeit des konstanten paramagnetischen Widerstandsbeitrags $\rho_{\text{mag}}(T \gg T_c)$ in der Konzentrationsabhängigkeit der individuellen atomaren Spins. Wegen der in den amorphen $B_{16}Si_4$ -Legierungssystemen gefundenen linearen Abhängigkeit für $\rho_{\text{mag}}(T \gg T_c)$ von der Zusammensetzung und der ungefähren Übereinstimmung des Zuwachses von $\rho_{\text{mag}}(T \gg T_c)$ mit den von den kristallinen Metallen /15, 16/ Fe und Co her zu erwartenden Werten (siehe Abschnitt II) könnte man geneigt sein, den paramagnetischen Widerstandsbeitrag nur auf die Anwesenheit von Fe oder Co zurückzuführen und anzunehmen, daß Ni kein magnetisches Moment entwickelt und nicht-magnetisch bleibt. Daß diese Deutung nicht haltbar ist, haben an dem $Fe_xNi_{80-x}B_{16}Si_4$ -System durchgeführte Untersuchungen des Mößbauer Effekts und der Magnetisierung /20/ gezeigt. Diese Messungen haben ergeben, daß das mittlere lokale Fe-Moment (μ_{Fe}) in dem hier untersuchten Konzentrationsbereich im wesentlichen konstant bei etwa $1.8 \mu_B$ bestehen bleibt, während das mittlere lokale Ni-Moment (μ_{Ni}) linear von $0.11 \mu_B$ für $x = 5$ bis etwa $0.23 \mu_B$ für $x = 11$ ansteigt und die Änderung des gesamten Sättigungsmoments (μ) mit der Legierungszusammensetzung nur durch die Variabilität der individuellen Ni-Momente bezüglich ihrer lokalen Umgebung verursacht wird.

Bei dem amorphen $Co_xNi_{80-x}B_{16}Si_4$ -System ist die Situation weniger klar, da man hier nicht auf Mößbauer- oder Neutronenstreuexperimente zurückgreifen kann. Die Perkulationsgrenze x_c ist auch bei diesem System gegenüber dem Wert für einen dreidimensionalen Heisenberg-Ferromagneten stark reduziert, so daß Ni bei x_c ein magnetisches Moment entwickeln sollte und die Perkulation bei der geringen Konzentration von Co-Momenten durch die amorphe Ni-Matrix vermittelt wird. Angesichts des relativ kleinen Sättigungsmomentes (siehe Tabelle II) pro Übergangsmetall-Atom ist zu erwarten, daß beide mittleren lokalen magnetischen Momente μ_{Co} und μ_{Ni} mit der Zusammensetzung variieren.

Auch bei den $Fe_xNi_{77-x}B_{13}Si_{10}$ -Legierungen liegen keine Informationen

über μ_{Fe} und μ_{Ni} vor. Jedoch kann hier zur Abschätzung dieser Größen auf die von Hilscher et al. /14/ publizierten Werte für das Fe-Hyperfeinfeld (HF) und das Sättigungsmoment μ dieser Materialien zurückgegriffen werden. μ_{Fe} ergibt sich dann näherungsweise aus der phänomenologischen Verknüpfung $HF(x) = a\mu_{Fe}(x) + b\mu(x)$, wenn man für die Kopplungsparameter die für das $Fe_xNi_{80-x}B_{16}Si_4$ -System /20/ ermittelten Werte $a \approx 12.8 \text{ T}/\mu_B$ und $b \approx 1.5 \text{ T}/\mu_B$ ansetzt. Diese Vorgehensweise ist sicherlich damit zu rechtfertigen, daß die elektronischen Strukturen der beiden Systeme einander sehr ähnlich sind. Es zeigt sich (siehe Tabelle II), daß auch bei dem $Fe_xNi_{77-x}B_{13}Si_{10}$ -System das mittlere lokale Fe-Moment in dem untersuchten Konzentrationsbereich nahezu unabhängig von der Zusammensetzung ist ($\mu_{Fe} \approx 1.7 \mu_B$) und Ni für $x > x_c$ ein kleines magnetisches Moment entwickelt, das sehr empfindlich auf Änderungen der lokalen Umgebung reagiert.

Zur Untersuchung der theoretisch vorausgesagten linearen Korrelation zwischen $\rho_{mag}(T \gg T_c)$ und dem Erwartungswert von $\langle S^2 \rangle$ (Gl. (9)) ist in Abb. 7 der paramagnetische Widerstandsbeitrag für die $Fe_xNi_{80-x}B_{16}Si_4$ - und $Fe_xNi_{77-x}B_{13}Si_{10}$ -Legierungen als Funktion der konfigurationsgemittelten Größe $\langle S_i(S_i+1) \rangle_c$ dargestellt, die mit den experimentell bestimmten mittleren lokalen Spinquantenzahlen S_i (siehe Tabelle II) berechnet werden kann. Wie man Abb. 7 entnehmen kann, ist $\rho_{mag}(T \gg T_c)$ in der Tat eine lineare Funktion von $\langle S_i(S_i+1) \rangle_c$. Diese Beobachtung deutet nachdrücklich darauf hin, daß die Größe des paramagnetischen Widerstandsbeitrags $\rho_{mag}(T \gg T_c)$ durch die lokalen magnetischen Momente bestimmt wird und impliziert eine nahezu unveränderte Stärke der sd-Austauschwechselwirkung für Fe und Ni. Die durchgezogene Gerade durch die Datenpunkte ist von Weiss und Marotta /15/ für kristalline 3d Metalle und Legierungen ermittelt worden. Aus der Steigung $\rho_0^c \approx (31.3 \pm 2) \mu\Omega \text{ cm}$ von $\rho_{mag}(T \gg T_c) = f(\langle S_i(S_i+1) \rangle_c)$ kann der die Stärke der sd-Austauschwechselwirkung beschreibende Parameter J_{sd} abgeschätzt werden. Unter der Annahme vom $E_F = (8 \pm 2) \text{ eV}$, $\Omega_c = (17.6 \pm 3) \text{ \AA}^3$ und Benutzung des experimentellen Wertes für ρ_0^c ergibt sich die sd-Austauschkonstante zu $J_{sd} = (0.75 \pm 0.13) \text{ eV}$, was relativ nahe bei dem allgemein akzeptierten Wert von 0.5 eV /21, 22/ ist. Aber angesichts der drastischen Näherungen, die zu Gl. (9) für $\rho_{mag}(T \gg T_c)$ geführt haben, sollte der Exaktheit dieser Zahl keine allzu große Bedeutung beigemessen werden. Man sollte noch einmal daran erinnern, daß der abgeschätzte Wert für die Stärke der sd-Austauschwechselwirkung auf der Näherung freier Elektronen basiert und überhaupt als effektive Stärke für den kombinierten Effekt

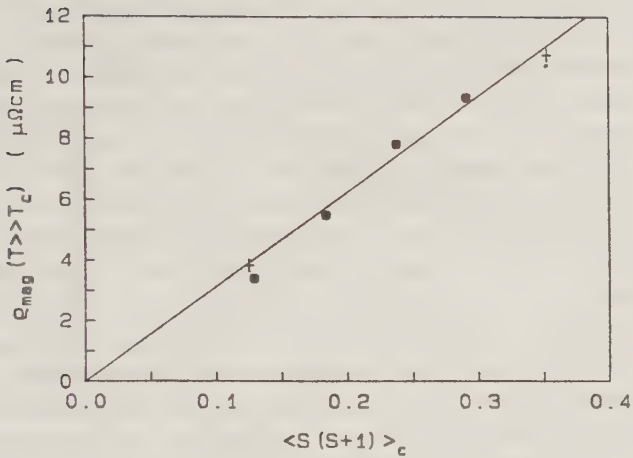


Abb. 7: Paramagnetischer Widerstandsbeitrag $\rho_{\text{mag}}(T \gg T_c)$ amorpher $\text{Fe}_x\text{Ni}_{80-x}\text{B}_{16}\text{Si}_4$ - (geschlossene Kreise) und $\text{Fe}_x\text{Ni}_{77-x}\text{B}_{13}\text{Si}_{10}$ - (Kreuze) Legierungen als Funktion von $\langle S(S+1) \rangle_c$. Die eingezeichnete Gerade ist von Weiss und Marotta /15/ für kristalline 3d Metalle und Legierungen ermittelt worden.

von s-s und s-d Streuprozessen angesehen werden muß /21/. In einer quantitativen Berechnung des spezifischen elektrischen Widerstands von Übergangsmetallen müssen die Transportintegrale unter Einbeziehung realistischer Elektronenzustände ausgewertet werden.

Betrachtet man den Wert für ρ_0^c als repräsentativ für 3d Übergangselemente, kann man bei der $\text{Co}_x\text{Ni}_{80-x}\text{B}_{16}\text{Si}_4$ -Serie genau den umgekehrten Weg einschlagen und versuchen, die mittleren lokalen magnetischen Momente μ_{Co} und μ_{Ni} mit Hilfe der experimentellen Daten für $\rho_{\text{mag}}(T \gg T_c)$ und μ zu berechnen. Die auf diese Weise ermittelten Werte für μ_{Co} und μ_{Ni} sind in Tabelle II zusammengestellt. Wie vermutet, variieren beide mittleren lokalen magnetischen Momente μ_{Co} und μ_{Ni} mit der Zusammensetzung. Während sich für $x \geq 11$ eine Tendenz zur Sättigung für $\mu_{\text{Co}}(x)$ andeutet (d. h. $\mu_{\text{Co}} = \text{const.}$), ist für $x < 11$ eine leichte Abnahme des mittleren lokalen Co-Moments zu verzeichnen. Vergleicht man den Sättigungswert von $\mu_{\text{Co}}(x \geq 11) \approx 1.22 \mu_B$ mit dem von $\text{Co}_{80}\text{B}_{20}$ /23/, der etwa $1.27 \mu_B$ beträgt, so erscheinen die Ergebnisse der durchgeführten Abschätzung durchaus vernünftig. Bei den $\text{Co}_x\text{Ni}_{80-x}\text{B}_{16}\text{Si}_4$ -Legierungen muß μ_{Co} ohnehin etwas kleiner sein als in $\text{Co}_{80}\text{B}_{20}$, da Si mehr Elektronen an

die d-Bänder der Übergangsmetall-Komponente abgibt als B. Das mittlere lokale magnetische Moment von Ni für Zusammensetzungen in der Nähe der Perkolationsgrenze erweist sich als extrem klein und zeigt die gleiche Zusammensetzungsabhängigkeit wie in der $\text{Fe}_x\text{Ni}_{80-x}\text{B}_{16}\text{Si}_4$ Serie, d. h. μ_{Ni} steigt mit zunehmendem Co-Gehalt steil an. Allerdings sollten diese Rechnungen nur als grobe Abschätzung für die mittleren lokalen magnetischen Momente angesehen werden, da die Ergebnisse dieses Verfahrens sehr empfindlich auf leichte Änderungen der Eingangsparameter reagieren (der Fehler für μ_{Ni} ($x < 11$) ist wahrscheinlich größer als 40%) und die Widerstandsmessung sicherlich keinen Ersatz für direkte Meßmethoden darstellt.

Wie bereits in Abschnitt II betont worden ist, weist $\rho_{\text{mag}}(T)$ auch im paramagnetischen Bereich eine ausgeprägte Temperaturabhängigkeit auf und zeigt erst weit oberhalb des Curie-Punktes eine Tendenz zur Sättigung. Dieses Verhalten kann nicht im Rahmen des einfachen Molekularfeld Ansatzes (Gl. (9)) gedeutet werden, der die in diesen metallischen Gläsern vorliegende kurzreichweitige Ordnung nicht berücksichtigt. Dieser Punkt wird weiter unten noch einmal aufgegriffen, und es soll zunächst die Aufmerksamkeit auf das Verhalten von ρ_{mag} im ferromagnetischen Bereich gerichtet werden. Man nimmt an, daß die MFA bei mittleren Temperaturen ρ_{mag} näherungsweise beschreibt, so daß Gl. (7) die experimentell beobachtete Temperatur- und Konzentrationsabhängigkeit von ρ_{mag} für $T \lesssim T_c$ erklären sollte. Für den direkten Vergleich mit der Theorie und zwischen den verschiedenen Proben ist in den Abbn. 8 und 9 das normierte Widerstandsverhältnis $\Delta r_{\text{mag}}(T) = (\rho_{\text{mag}}(T) - \rho_{\text{mag}}(0)) / (\rho_{\text{mag}}(T_c) - \rho_{\text{mag}}(0))$ als Funktion der reduzierten Temperatur T/T_c dargestellt. Wie man diesen Abbildungen entnehmen kann, ist Δr_{mag} für $T \lesssim T_c$ näherungsweise eine lineare Funktion der Temperatur mit einer Steigung, die mit abnehmender Fe- bzw. Co-Konzentration leicht zunimmt. Entwickelt man Δr_{mag} nach Potenzen von $(T_c - T)$ und benutzt die konventionelle Molekularfeld-Theorie, um $\langle S_{1T_c}^z \rangle^2$ als Funktion der Temperatur darzustellen, so erhält man für den zusätzlichen Widerstandsbeitrag einer ferromagnetischen amorphen Legierung für $T \rightarrow T_c$

$$\Delta r_{\text{mag}}(T) = 1 - \frac{10 \langle S(S+1) \rangle_c}{3 \langle S(S+1) (2S^2 + 2S+1) \rangle_c} \frac{1 + \langle S(S+1) \rangle_c \left[\frac{\langle S^2 \rangle_c}{\langle S \rangle_c^2} - a_3 (2k_F) \right]}{\langle S(S+1) \rangle_c - a_3 (2k_F) \langle S \rangle_c^2} \left[1 - \frac{T}{T_c} \right], \quad (10)$$

die die experimentell beobachtete lineare Variation von Δr_{mag} mit der Temperatur voraussagt und nur noch von dem gemittelten magnetischen

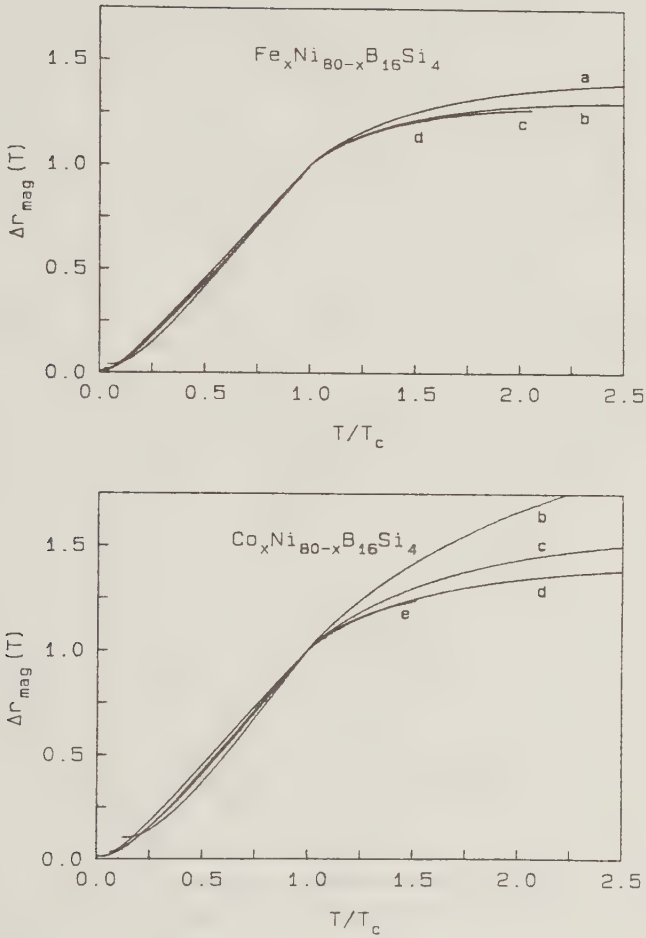


Abb. 8: Normierter magnetischer Widerstandszuwachs $\Delta r_{\text{mag}}(T) = (\rho_{\text{mag}}(T) - \rho_{\text{mag}}(0)) / (\rho_{\text{mag}}(T_c) - \rho_{\text{mag}}(0))$ amorpher $\text{Fe}_x\text{Ni}_{80-x}\text{B}_{16}\text{Si}_4$ (oben) und $\text{Co}_x\text{Ni}_{80-x}\text{B}_{16}\text{Si}_4$ (unten) Legierungen als Funktion der reduzierten Temperatur T/T_c für $x = 5$ (a), 7 (b), 9 (c), 11 (d) und 19 (e).

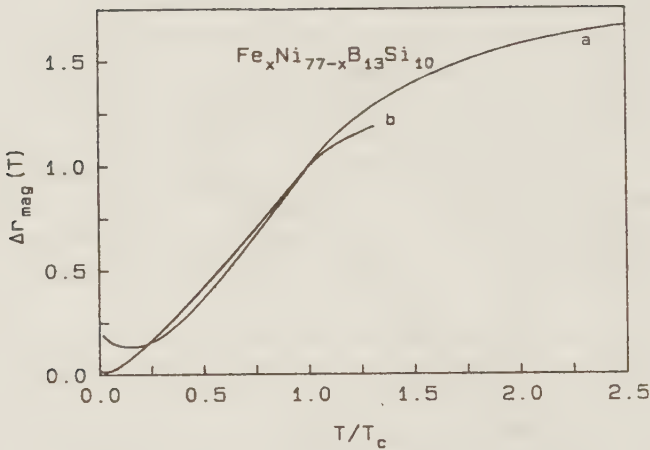


Abb. 9: Normierter magnetischer Widerstandszuwachs $\Delta r_{\text{mag}}(T) = (\rho_{\text{mag}}(T) - \rho_{\text{mag}}(0)) / (\rho_{\text{mag}}(T_c) - \rho_{\text{mag}}(0))$ amorpher $\text{Fe}_x\text{Ni}_{77-x}\text{B}_{13}\text{Si}_{10}$ -Legierungen als Funktion der reduzierten Temperatur T/T_c für $x = 7.7$ (a) und 15.4 (b).

Strukturfaktor und konfigurationsgemittelten Spinquantenzahlen abhängt. Für eine numerische Abschätzung von $a_3(2k_F)$ ist Gl. (10) im Temperaturbereich $0.9 \leq T/T_c \leq 1$ an die $\Delta r_{\text{mag}}(T)$ -Daten angepaßt worden. Eine Zusammenstellung der aus den Anpassungsparametern unter Verwendung der experimentellen S_i -Daten ermittelten Werte für $a_3(2k_F)$ findet sich in Tabelle II. Es zeigt sich, daß $a_3(2k_F)$ bei kleinem Fe- und Co-Gehalt beträchtliche Werte annehmen kann und mit zunehmender Konzentration von Fe und Co kleiner wird und sich dem homogenen Grenzfall $a_3(2k_F) \approx 1$ annähert, für den sich $a_3(2k_F)$ auf ein gewichtetes Integral über den statistischen geometrischen Strukturfaktor reduziert. Das gewichtete Integral über den magnetischen Strukturfaktor ist ein Maß für die Konzentration der magnetischen Ionen und die vorliegende Nahordnung. Daß $a_3(2k_F)$ bei dem a-Co-Ni System die größten beobachteten Werte annimmt, kann als Indiz für eine sehr inhomogene Verteilung lokaler magnetischer Momente angesehen werden. Nimmt man eine statistische Verteilung von magnetischen Momenten auf einer amorphen Matrix an, d. h.

$$a_m(q) = \frac{\langle S_{ic}^2 \rangle}{\langle S_i^2 \rangle} - 1 + a(q) \quad ,$$

kann man mit Hilfe der experimentellen mittleren lokalen Spinquanten-zahlen S_i die Größenordnung von $a_3(2k_F)$ auch theoretisch abschätzen (in dieser Relation bezeichnet $a(q)$ den statischen geometrischen Struktur-faktor). Diese berechneten Werte für $a_3(2k_F)$ (siehe Tabelle II) zeigen tendentiell die gleiche Abhängigkeit von der Zusammensetzung wie die experimentell ermittelten Werte, unterscheiden sich von ihnen aber im Absolutwert zum Teil sehr deutlich. Während bei den Fe-Ni-Systemen die gerechneten $a_3(2k_F)$ Werte größer sind als die über Gl. (10) experimen-tell ermittelten Werte, ist bei dem Co-Ni System der umgekehrte Fall zu verzeichnen. Dies zeigt noch einmal nachdrücklich, daß für diese Analy-sen sehr genaue Werte für die mittleren lokalen magnetischen Momente erforderlich sind und unterstreicht den qualitativen Charakter dieser Abschätzungen. Bei der amorphen $\text{Fe}_{7.7}\text{Ni}_{69.3}\text{B}_{13}\text{Si}_{10}$ -Legierung sind die Abweichungen am größten, da hier auch die berechneten mittleren lokalen magnetischen Momente mit den größten Fehlern behaftet sind.

Die Diskussion der Ergebnisse im Rahmen der Molekularfeld-Näherung sollte nicht abgeschlossen werden, ohne einen Wert für den magnetischen Restwiderstand $\rho_{\text{mag}}(0)$ der untersuchten Legierungen anzugeben, der zwar nicht direkt experimentell bestimmt, aber nach Gl. (8) mit den experi-mentellen Werten für ρ_0^C , $\langle S_{iC}^2 \rangle$ und $a_3(2k_F)$ berechnet werden kann. Bei allen amorphen Systemen steigt $\rho_{\text{mag}}(0)$ (siehe Tabelle II), das mit dem mittleren Wert für $a_3(2k_F)$ berechnet worden ist, linear mit dem Fe-bzw. Co-Gehalt an und trägt nur maximal 5% zum gesamten Restwiderstand bei. Die Beiträge von $0.27 \mu\Omega \text{ cm/at\%Fe}$ und $0.18 \mu\Omega \text{ cm/at\%Co}$ zum Restwi-derstand sind deutlich kleiner als der analoge Zuwachs beim paramagne-tischen Widerstandsbeitrag $\rho_{\text{mag}}(T \gg T_C)$. Somit ist die Molekularfeld-Näherung in durchaus befriedigender Übereinstimmung mit den experimen-tellen Ergebnissen, wenn man von den schon erwähnten Unzulänglichkeiten im paramagnetischen Bereich ($T \gtrsim T_C$) absieht.

Geht man von T_C aus zu tieferen Temperaturen über, so steigt der Ex-ponent des Potenzgesetzes von eins allmählich auf $3/2$ an, so daß bei tiefen Temperaturen ein asymptotisches $T^{3/2}$ -Verhalten für ρ_{mag} vorzu-liegen scheint. Im Gegensatz dazu setzt sich der theoretische Tieftem-peraturausdruck für ρ_{mag} (Gl. (6)) aus zwei Termen zusammen: der erste ist das Ergebnis zweier konkurrierender $T^{3/2}$ -Beiträge infolge der in-kohärenten (nicht impulserhaltenden) und elastischen Anteile der Elek-tron-Magnon Streurrate, während der zweite den kohärenten Spinwellen-Beitrag repräsentiert, der wie T^2 variiert. Eine Abschätzung der rela-tiven Bedeutung der $T^{3/2}$ - und T^2 -Terme unter der Annahme $a \approx 2.6 \text{ \AA}$,

$k_F \approx 1.5 \text{ \AA}^{-1}$ und $D \approx 50 \text{ meV \AA}^2$ zeigt, daß innerhalb des untersuchten Temperaturbereichs der $T^{3/2}$ -Term den T^2 -Term um mindestens zwei Größenordnungen übersteigt, so daß in amorphen Ferromagneten $\rho_{\text{mag}}(T) \sim T^{3/2}$ für $T \ll T_C$ ist. Somit entspricht das asymptotische Tieftemperaturverhalten von ρ_{mag} aller untersuchten Legierungen der von Gl. (6) vorausgesagten Gesetzmäßigkeit, und es scheint, daß die Streuung der Leitungselektronen an Spinwellen über den Mechanismus der sd-Austauschwechselwirkung der experimentell gefundenen Temperaturabhängigkeit Rechnung trägt. Es bleibt noch zu überprüfen, ob die beobachtete Konzentrationsabhängigkeit für den Koeffizienten des $T^{3/2}$ -Terms von dem theoretischen Ausdruck

$$A = \rho_{\text{mag}}(0) \frac{\Gamma(3/2) \zeta(3/2)}{4\pi^2 \langle S_{ic} \rangle} \left(\frac{a^2 k_B}{D} \right)^{3/2}$$

korrekt wiedergegeben wird und die zur Erklärung der experimentellen Ergebnisse erforderliche Größe von A vernünftig ist. Die mit den experimentellen Daten für $\rho_{\text{mag}}(0)$, $\langle S_{ic} \rangle$ und D und unter der Annahme von $a = 2.6 \text{ \AA}$ berechneten Werte für den Koeffizienten des $T^{3/2}$ -Terms sind in Tabelle II den analogen experimentellen Daten gegenübergestellt. Den tabellierten Werten ist zu entnehmen, daß die theoretischen Abschätzungen für A bis auf einen Faktor 2 - 4 mit den experimentell gemessenen übereinstimmen und die gleiche Zusammensetzungsabhängigkeit aufweisen. Auch die vergleichsweise höheren experimentellen Werte für A bei dem a-Co-Ni System werden durch die Theorie korrekt wiedergegeben. Die Tatsache, daß die Abweichungen zwischen Theorie und Experiment bei allen untersuchten Systemen von gleicher Größenordnung ist, kann als nachträgliche Bestätigung für die Mittelwertbildung bei der Abschätzung des gewichteten Integrals über den magnetischen Strukturfaktor $a_3(2k_F)$ gewertet werden. Da bei gleichen Curie-Temperaturen die Spinwellen-Steifigkeitskonstante D bei den Fe-Ni-Systemen kleiner ist als bei den Co-Ni-Legierungen (siehe Tabelle II), werden die größeren experimentellen Werte für A beim a-Co-Ni System im Rahmen des Spinunordnungs-Modells offensichtlich durch eine inhomogenere Verteilung von lokalen magnetischen Momenten verursacht. Gerade die Größe des gewichteten Integrals über den magnetischen Strukturfaktor rückt die theoretischen Werte für A in die Nähe der experimentellen Daten. Das Spinunordnungs-Modell scheint daher bemerkenswert erfolgreich zu sein im Hinblick auf eine quantitative Beschreibung von $\rho_{\text{mag}}(T)$ bei den in dieser Arbeit unter-

suchten verdünnten amorphen ferromagnetischen Legierungen, wenn bei der Berechnung der elektronischen Übergangsraten dem Legierungscharakter durch die Einbeziehung statischer Spininhomogenitäten Rechnung getragen wird. In diesem Sinne bestätigen die vorliegenden Ergebnisse für den untersuchten Konzentrationsbereich in eindeutiger Weise die aus der Gültigkeit der Matthiessen'schen Regel abgeleiteten Zerlegung der Widerstandsdaten.

Der experimentelle Befund, daß bei den hier untersuchten verdünnten amorphen Ferromagneten das asymptotische Tieftemperaturverhalten von ρ_{mag} einem $T^{3/2}$ -Potenzgesetz genügt, steht in krassem Gegensatz zu den an Fe-reichen homogenen amorphen Ferromagneten mit hohen Curie Temperaturen erhaltenen Ergebnissen (Kapitel 6), die für ρ_{mag} ein asymptotisches T^2 -Potenzgesetz ausweisen. Daraus ist abgeleitet worden, daß in diesen Fe-reichen amorphen Ferromagneten die kohärente Streuung der Leitungselektronen an langwelligen Magnonen (T^2 -Term in Gl. (6)) durch die eingefrorene Unordnung nicht beeinflusst wird und sich die konkurrierenden Beiträge des inkohärenten und elastischen Anteils der Elektron-Magnon Streuung, die beide wie $T^{3/2}$ variieren, nahezu kompensieren und somit der $T^{3/2}$ -Term vernachlässigbar klein gegen den T^2 -Term sein sollte. Diese offensichtliche Diskrepanz ist nur auf Beschränkungen des verwendeten theoretischen Modells zurückzuführen, das die Spinaufspaltung des Leitungsbandes nicht berücksichtigt, die bei kristallinen ferromagnetischen Legierungen /4, 5/ zu erheblichen Abweichungen von der Matthiessen'schen Regel führt. Wegen der Austauschaufspaltung dieser Unterbänder sind die Eigenschaften der Elektronen in der Umgebung des Fermi-Niveaus von ihrer Spinrichtung abhängig, und insbesondere die Spin-Umklapp-Streuung (wie z. B. die Elektron-Magnon Streuung) kann durch den Transfer von Elektronen zwischen den Unterbändern zum Gesamtwiderstand beitragen. Dieses Zwei-Strom-Modell ist von Herzer /19/ auf der Basis einer kombinierten Spin- und Potentialstreuung auf amorphe Ferromagnete verallgemeinert worden. In der abgeleiteten Formel für den Gesamtwiderstand

$$\rho(T) = \rho_0 + 2 \frac{1+\alpha^2}{(1+\alpha)^2} \rho_{\text{mag}}(T) + \left(\frac{1-\alpha}{1+\alpha} \right)^2 \rho_{\text{mag}}^{\uparrow\downarrow}(T) \quad (11)$$

steht ρ_0 für den Restwiderstand (abgesehen von einem kleinen temperaturabhängigen Beitrag), $\rho_{\text{mag}}(T)$ ist je nach Temperaturbereich identisch mit den Ausdrücken in den Gln. (6) oder (7), und $\rho_{\text{mag}}^{\uparrow\downarrow}(T)$ ist ein Mischterm, der in der MFA vernachlässigt werden kann. Im Spinwellen-Gebiet

ist $\rho_{\text{mag}}^{\text{II}}(T)$ durch

$$\rho_{\text{mag}}^{\text{II}}(T) = \rho_0^c \langle S_c^2 \rangle \left\{ \frac{3\Gamma(3/2)\zeta(3/2)}{2\pi^2} (a_1(2k_F) - a_3(2k_F)) \left(\frac{a^2 k_B T}{D} \right)^{3/2} + \frac{k_B T}{k_F^2 D} \left[I_1(y_{\min}) - \frac{1}{2} \frac{k_B T}{k_F^2 D} I_{3/2}(y_{\min}) \right] \right\} \quad (12)$$

gegeben, wobei die

$$I_n(y) = \int_y^\infty dx \frac{x(x-y)^{n-1} e^{-x}}{(e^x - 1)^2}$$

bestimmte Integrale sind, in deren unterer Integrationsgrenze $y_{\min} = \beta(\Delta/E_F)^2 D k_F^2$ ($\Delta = J_{sd} \langle \langle S_{IC}^2 \rangle \rangle$) die Tatsache zum Ausdruck kommt, daß für die kohärente Streuung eines Elektrons vom $s\uparrow$ - ins $s\downarrow$ -Band (und natürlich auch für den umgekehrten Prozeß) ein Magnon mit dem Mindestimpuls $q_{\min} = |k_F^\uparrow - k_F^\downarrow|$ erforderlich ist. Nach Gl. (11) ist die Temperaturabhängigkeit von ρ ein kompliziertes Zusammenspiel verschiedener Terme, deren effektive Beiträge in kritischer Weise von dem Verhältnis $\alpha = \rho_0^\uparrow / \rho_0^\downarrow$ der partiellen Restwiderstände abhängt. Verschiedene α -Werte führen zu unterschiedlichem Tieftemperaturverhalten von ρ_{mag} , wobei die Größe von α eng mit dem magnetischen Zustand eines Materials verknüpft ist. Im Rahmen des Band-Modells /31/ können ferromagnetische Materialien in starke und schwache Ferromagnete klassifiziert werden, je nachdem ob das $d\uparrow$ -Spinband vollständig gefüllt ist oder beide $d\uparrow$ - und $d\downarrow$ -Bänder nur teilweise mit Elektronen besetzt sind. In schwach ferromagnetischen Systemen ($\alpha \approx 1$) haben $\rho_0^\uparrow$ und $\rho_0^\downarrow$ vergleichbare Werte, da in beiden $d\uparrow$ - und $d\downarrow$ -Bändern freie Zustände vorhanden sind, in die Elektronen gestreut werden können, während in stark ferromagnetischen Systemen ($\alpha > 1$) der Wert von $\rho_0^\uparrow$ deutlich größer ist als der von $\rho_0^\downarrow$, da bei der Fermi-Energie keine freien $d\uparrow$ -Zustände vorhanden sind. Die in dieser Arbeit untersuchten glasigen Legierungen können wegen des kleinen magnetischen Moments (siehe Tabelle II) und der hohen Zustandsdichte bei der Fermi-Energie /12/ als schwache Ferromagnete im Sinne des Stoner-Kriteriums angesehen werden. Folglich unterscheiden sich $\rho_0^\uparrow$ und $\rho_0^\downarrow$ nur unwesentlich, und ihr Verhältnis α ist ungefähr gleich eins, so daß der Beitrag des Mischterms in Gl. (11) zum Gesamt Widerstand vernachlässigbar klein wird. In diesem Fall reduziert sich Gl. (11) einfach auf das für die Analyse der Widerstandsdaten benutzte Ein-Strom-Modell, und die gezogenen Schlußfolgerungen werden nicht beeinträchtigt. Dagegen ist die Si-

tuation bei den in Kapitel 6 untersuchten Fe-reichen ferromagnetischen amorphen Legierungen völlig anders. Untersuchungen der spontanen magnetischen Widerstandsanisotropie /25/, der Hochfeldsuszeptibilität /25/ und der spezifischen Wärmekapazität /26/ von amorphem $\text{Fe}_{80}\text{B}_{20}$ geben klare Hinweise darauf, daß diese Legierung nahe der Grenze für starken Ferromagnetismus einzuordnen ist, d. h. $\alpha > 1$, so daß beide Terme in Gl. (11) zum Tieftemperaturwiderstand von ρ beitragen. Für den Fall $\alpha > 1$ ergibt sich aus der Theorie strenggenommen kein einfaches Potenzgesetz mehr für die Temperaturabhängigkeit des spezifischen elektrischen Widerstands. Theoretische Analysen von Gl. (11) /19/ zeigen, daß sich das Verhalten von ρ in einem begrenzten Temperaturintervall dennoch durch Gesetzmäßigkeiten der Form T^n mit $n \simeq 1.5 - 2$ beschreiben läßt, wobei das Temperaturintervall, in dem n konstant ist, und der genaue Wert von n vor allem vom Polarisationsgrad Δ/E_F und α abhängen. Es zeichnet sich dabei ab, daß für große Werte von Δ/E_F und α in Übereinstimmung mit dem experimentellen Befund für die genannten konzentrierten amorphen Ferromagnete eher eine T^2 -Abhängigkeit des spezifischen elektrischen Widerstands zu erwarten ist. Dieses Verhalten ist im wesentlichen auf den kohärenten Anteil des Mischterms $\rho_{\text{mag}}^{\uparrow\downarrow}$ zurückzuführen.

In der bisherigen Diskussion ist das Verhalten von ρ_{mag} im kritischen Bereich und für $T \geq T_c$ ausgeklammert worden, auf das abschließend noch kurz eingegangen werden soll. Während die konventionelle MFA (Gl. (10)) die Variation von ρ_{mag} mit der Temperatur für $T \leq T_c$ korrekt voraussagt, so versagt sie doch ganz entschieden bei der Erklärung der beobachteten ausgeprägten Temperaturabhängigkeit von ρ_{mag} für $T \geq T_c$ (Abb. 8 und 9), obwohl sich dieses Verhalten schon bei Temperaturen $T < T_c$ andeutet. In der Umgebung der Ordnungstemperatur ist die in der MFA vernachlässigte kritische Streuung der Leitungselektronen an Fluktuationen des Spin-Systems der dominante Mechanismus und bestimmt das Transportgeschehen /27/. In der reduzierten Darstellung $\Delta r_{\text{mag}} = f(T/T_c)$ (Abbn. 8 und 9) variiert die Steigung von Δr_{mag} für $T \leq T_c$ nur schwach mit der Zusammensetzung, während die Kurven oberhalb T_c sehr stark auffächern. Dieser Effekt ist bei dem Co-Ni-System besonders ausgeprägt. Bei allen untersuchten Legierungssystemen nimmt die Überhöhung von Δr_{mag} über den Wert bei T_c (und damit auch die Steigung der Kurven für $T \geq T_c$) mit abnehmender Curie-Temperatur sehr stark zu. Die erhebliche Dynamik des magnetischen Widerstandsbeitrags im paramagnetischen Bereich belegt in eindeutiger Weise die Existenz kurzreichweitiger magnetischer Korrelationen des Spin-Systems oberhalb T_c . Auch Mößbauer Untersuchungen /28/

an vergleichbaren metallischen Gläsern in einem externen Magnetfeld bestätigen in direkter Weise die Persistenz kurzreichweitiger magnetischer Ordnung weit oberhalb T_c , die letztendlich für das nicht-monotone Verhalten des kritischen Exponenten γ der magnetischen Anfangssuszeptibilität /29/ verantwortlich ist. Sowohl die Korrelationslänge als auch die Lebensdauer solcher superparamagnetischen Cluster sind abnehmende Funktionen der Temperatur, wobei die Korrelationslänge mit der mittleren freien Weglänge der beweglichen Ladungsträger in Beziehung zu setzen ist und die Lebensdauer mit der Streuzeit der Leitungselektronen. Solange die Elektronenstreuzeit kleiner als die charakteristische Zeit für lokale Spin-Fluktuationen bleibt, sind oberhalb der Ordnungstemperatur temperaturabhängige magnetische Widerstandsbeiträge zu erwarten. Darüber hinaus sollten wegen der kurzen mittleren freien Weglänge der Leitungselektronen die Spininhomogenitäten innerhalb eines superparamagnetischen clusters die Größenordnung des magnetischen Widerstandsbeitrags oberhalb T_c bestimmen, wie dies auch im ferromagnetischen Bereich der Fall ist, in dem der aus der elastischen und inkohärenten magnetischen Streuung der Leitungselektronen resultierende Widerstandsbeitrag durch das Auftreten des statischen magnetischen Strukturfaktors erheblich verstärkt wird. In diesem Bild läßt sich das Anwachsen des Sättigungswertes von $\Delta\rho_{\text{mag}}$ über den Wert bei T_c für $x \rightarrow x_c$ zumindest qualitativ verstehen und gibt einen Anhaltspunkt für mögliche theoretische Ansätze zum Verständnis dieses Phänomens.

Wegen der für kristalline Systeme theoretisch vorhergesagten und experimentell verifizierten Proportionalität zwischen der spezifischen Wärmekapazität C_{mag} und der Ableitung $d\rho_{\text{mag}}/dT$ des Widerstands nach der Temperatur im kritischen Bereich /27/ wird die Widerstandsmessung i. a. als alternative indirekte Methode zur Untersuchung des kritischen Verhaltens der spezifischen Wärmekapazität C_{mag} angesehen /29/. Abweichend vom Verhalten homogener kristalliner Ferromagnete, bei denen die Ableitung $d\rho_{\text{mag}}/dT$ in der unmittelbaren Umgebung der Curie-Temperatur den auch für die spezifische Wärmekapazität typischen λ -förmigen Verlauf aufweist, ist bei den in dieser Arbeit untersuchten verdünnten amorphen Ferromagneten das Fehlen einer Überhöhung von $d\rho_{\text{mag}}/dT$ bei T_c . Geht man davon aus, daß der echte kritische Bereich bei den amorphen Systemen von der gleichen Größenordnung ist wie bei kristallinen Ferromagneten, d. h. $\epsilon = |T - T_c|/T_c \lesssim 0.03$ /25/, sollte im Rahmen der Meßgenauigkeit zumindest bei den Zusammensetzungen mit den höchsten Ordnungstemperaturen für $T_c - T \lesssim 6$ K ein Anstieg in der Ableitung $d\rho_{\text{mag}}/dT$ auflösbar sein.

Falls im ferromagnetischen Bereich überhaupt ein Anstieg von ρ_{mag}/dT bei der Annäherung an T_c vorhanden ist, grenzen die vorliegenden experimentellen Ergebnisse dieses Temperaturintervall auf $T_c - T < 1 \text{ K}$ ein. Messungen von C_{mag} glasiger Legierungen (eine Übersicht über C_p -Messungen ist in Ref. 29 zu finden) mit Zusammensetzungen nahe der Perkolationsgrenze zeigen, daß die Anomalie am Curie-Punkt sich nur durch einen kleinen Buckel bemerkbar macht und damit wesentlich schwächer ausgeprägt ist als für ρ_{mag}/dT und z. Z. weder einen klaren Nachweis für die oben erwähnte Proportionalität zwischen C_{mag} und ρ_{mag}/dT , noch eine eindeutige Bestimmung kritischer Exponenten gestattet. Das kritische Verhalten homogener Systeme wird scheinbar durch die Einführung von Unordnung erheblich beeinflusst und wirft die Frage auf, ob bei den untersuchten verdünnten amorphen Ferromagneten die für homogene Systeme theoretisch vorausgesagten Gesetzmäßigkeiten im kritischen Bereich überhaupt anwendbar sind. Für ein tieferes Verständnis dieser Problematik sind sicherlich noch eingehende theoretische Analysen und weitere experimentelle Untersuchungen wie z. B. die direkte Messung der Ableitung $d\rho/dT$ wünschenswert.

IV. Schlußfolgerungen

Das Widerstandsverhalten amorpher Ferromagnete ist ein kompliziertes Zusammenspiel verschiedener Streumechanismen. Es konnte gezeigt werden, daß bei den untersuchten verdünnten amorphen Ferromagneten nur unter der Annahme der Gültigkeit der Matthiessen'schen Regel der durch die Spin-Streuung verursachte Widerstandsbeitrag ρ_{mag} im gesamten Temperaturbereich separiert werden kann. Dieser Beitrag, der klein gegen den Strukturbeitrag ist, bestimmt im ferromagnetischen Bereich wesentlich den Temperaturgang des Gesamtwiderstands. Eine eingehende Analyse dieses Beitrags ρ_{mag} im Rahmen des Spinunordnungs-Modells führt zu folgenden Schlußfolgerungen:

- (i) Der konstante paramagnetische Widerstandsbeitrag wird durch die individuellen mittleren magnetischen Momente bestimmt.
- (ii) Die eingefrorene Unordnung hat keinen merklichen Einfluß auf den Wert der für kristalline 3d Metalle und Legierungen charakteristischen Widerstandsgröße ρ_0^C und damit auf das Austauschintegral J_{sd} .
- (iii) Für $T \lesssim T_c$ werden die Größe, die Konzentrationsabhängigkeit und der Temperaturgang von ρ_{mag} in befriedigender Weise von der Theorie vorhergesagt, wenn bei der Berechnung der elektronischen

Übergangsraten für die Spinstreuung der amorphen Struktur durch die Einbeziehung statischer Spininhomogenitäten Rechnung getragen wird.

- (iv) Die Überhöhung von ρ_{mag} im paramagnetischen Bereich über den Wert bei T_c , die nicht mit dem einfachen Molekularfeld-Ansatz erklärt werden kann, ist scheinbar ebenfalls mit den Spininhomogenitäten korreliert, die auch maßgeblich die Größenordnung von ρ_{mag} im ferromagnetischen Bereich bestimmen.
- (v) Das Verhalten von ρ_{mag} im kritischen Bereich wird durch die eingefrorene Unordnung erheblich modifiziert, die bei der Suche nach einer Erklärung im Rahmen der derzeitigen theoretischen Ansätze unbedingt berücksichtigt werden muß.

§8 Absolute Thermokraft amorpher $\text{Fe}_x\text{Ni}_{80-x}\text{B}_{20}$ -Legierungen

I. Einleitung

Wie in der Einführung (§1) beschrieben, sind zur Erklärung der elektrischen Transporterscheinungen in metallischen Gläsern verschiedene theoretische Modelle wie das erweiterte Faber-Ziman Diffraktions-Modell /1/, das Mott'sche s-d Streu-Modell /2/, das pseudo-Kondo-Modell /3/, das sich auf der Kondo-ähnlichen Streuung an einem Zwei-Niveau Tunnel-System gründet und das "wiederbelebte" Kondo-Modell /4/ (das nur auf magnetische Gläser anwendbar ist) vorgeschlagen worden. Während mit diesen Modellen für bestimmte theoretische Parametersätze und innerhalb begrenzter Temperaturbereiche charakteristische Eigenschaften des spezifischen elektrischen Widerstands (ρ) wiedergegeben werden können, sagen sie ein völlig unterschiedliches Verhalten für die Thermokraft (S) voraus /5/. Die Untersuchung der Thermokraft ist daher eine leistungsfähige Methode um herauszufinden, welche der oben angeführten Theorien die Transporteigenschaften metallischer Gläser adäquat beschreibt. Aus diesem Grunde hat sich in den letzten Jahren das experimentelle Interesse neben der Untersuchung des spezifischen elektrischen Widerstands auf das Verhalten der Thermokraft amorpher Materialien konzentriert /6, 7/.

Ein quantitativer Vergleich zwischen den Voraussagen der derzeitigen Transporttheorien und der Temperatur- und Konzentrationsabhängigkeit experimenteller Thermokraftergebnisse nicht-magnetischer Gläser /8, 9/ hat gezeigt, daß sowohl für das Mott- als auch für das Faber-Ziman-Modell die Übereinstimmung zwischen Theorie und Experiment als durchaus befriedigend bezeichnet werden kann (im letzteren Fall insbesondere dann, wenn die Temperaturabhängigkeit des Strukturfaktors berücksichtigt wird /10/). Auch das "Tiefemperaturknie" von S bei den nicht-magnetischen amorphen Legierungen fand durch neuere theoretische Arbeiten /11, 12/ eine Erklärung in der Verstärkung des Diffusionsterms als Folge der Elektron-Phonon Wechselwirkung, was die Bedeutung der Thermokraft zum Verständnis der Transportphänomene in metallischen Gläsern weiter unterstreicht.

Dagegen ist die Situation bei den magnetischen Gläsern noch ziemlich unklar, da die Mehrzahl der verfügbaren Thermokraft-Ergebnisse in der Hauptsache an Legierungen mit völlig unterschiedlichen Zusammensetzungen /13, 14/ erhalten worden sind. Es hat sich gezeigt, daß die Thermokraft dieser Materialien viel empfindlicher auf Änderungen des magne-

tischen Zustands reagiert als der spezifische elektrische Widerstand ρ /13, 15/. S ist vorzugsweise negativ bei tiefen Temperaturen und zeichnet sich durch ein ausgesprochen nicht-lineares, teilweise sogar nicht-monotones Verhalten aus. Augenfällig ist dabei auch die erhebliche Erhöhung in der Größenordnung von 10^3 gegenüber den nicht-magnetischen Gläsern. Diese heterogene Ansammlung von Thermokraft-Daten hat eine vorläufige Erklärung im Rahmen des "wiederbelebten" Kondo-Modells /14/ gefunden, das auf der Kondo-Streuung von Elektronen an den Spins basiert, die sich in dem Ausläufer der inneren effektiven Feldverteilungsfunktion im Bereich des Null-Feldes befinden. Trotz der Tatsache, daß in den glasigen ferromagnetischen Legierungen das Thermokraft-Verhalten ähnlich dem der kristallinen Ferromagnete Fe, Co und Ni ist und sich bei einigen Untersuchungen sogar eine Änderung der Steigung dS/dT bei der Curie-Temperatur andeutet /16/, ist der durch die magnetische Streuung verursachte Beitrag zur Thermokraft in den experimentellen Arbeiten bisher kaum berücksichtigt worden.

Sowohl für den kristallinen als auch für den amorphen Fall ist das Thermokraft-Verhalten ferromagnetischer Legierungen in nur wenigen Arbeiten theoretisch untersucht worden. Bei den kristallinen Ferromagneten ist dieses Phänomen von Kasuya /17/ theoretisch im Rahmen sd -Austausch Modells erklärt worden, das Maeda et al. /18/ experimentell an Thermokraft-Daten kristalliner Fe-Ni-Legierungen verifiziert haben. Erst kürzlich haben Korenblit /19/ und Herzer /20/ im Rahmen des Band-Modells für Ferromagnetismus den magnetischen Beitrag zur Thermokraft amorpher Ferromagnete durch ein vereinfachtes Verfahren zur Lösung der Boltzmann'schen Transportgleichungen für beide s -Unterbänder theoretisch untersucht. Die von Herzer /20/ in der Spinwellen- und Molekularfeld-Näherung abgeleiteten Ausdrücke für S weichen von der Mott-Formel /21/ ab und sagen einen gewichtigen negativen magnetischen Thermokraftbeitrag voraus, der bei $T = 0$ K und oberhalb der Curie-Temperatur verschwindet und somit im ferromagnetischen Bereich im $S(T)$ -Verlauf zu einem auch experimentell beobachteten Extremum Anlaß gibt.

Ein quantitativer Vergleich der von Herzer abgeleiteten $S(T)$ -Beziehungen mit experimentellen Thermokraft-Ergebnissen /22, 23/ hat bisher zu widersprüchlichen Schlußfolgerungen geführt. So finden Bhatia et al. /22/, daß sowohl die Größenordnung als auch der Temperaturgang von S amorpher Fe-Ni-Cr-Mo-Si-B-Legierungen im Spinwellen-Gebiet und im Hochtemperaturbereich in Übereinstimmung mit Herzer's theoretischen Ergebnissen sind; allerdings werden in dieser Arbeit die Anpassungsparameter

nicht näher spezifiziert. Dagegen kommen Svoboda et al. /23/ auf Grund eingehender Untersuchungen des Thermokraft-Verhaltens einiger amorpher $\text{Fe}_x\text{Ni}_{80-x}\text{B}_{20}$ -Legierungen ($40 \leq x \leq 70$) bei tiefen Temperaturen ($T \leq 8 \text{ K}$) zu gegenteiligen Schlußfolgerungen. Diese Schlußfolgerungen beruhen aber auf der Diskussion einer Näherung von Herzer's /20/ allgemeiner Spinwellen-Beziehung für S , die nur oberhalb der Einfriertemperatur T_0 für kohärente Elektron-Magnon Streuprozesse gültig ist. Für den von Svoboda et al. /23/ untersuchten Konzentrationsbereich ist T_0 oberhalb des vermessenen Temperaturintervalls anzusiedeln, so daß die von diesen Autoren gezogenen Schlußfolgerungen noch einer eingehenden Prüfung bedürfen und die Verifizierung der Hauptaussagen der Theorie von Herzer nach wie vor eine offene Frage ist.

Aus diesem Grunde ist in dieser Arbeit die Thermokraft des amorphen $\text{Fe}_x\text{Ni}_{80-x}\text{B}_{20}$ -Systems über einen größeren Konzentrations- ($10 \leq x \leq 80$) und Temperaturbereich ($4 \leq T \leq 300 \text{ K}$) untersucht und ein quantitativer Vergleich dieser Ergebnisse mit den derzeitigen theoretischen Modellen angestrebt worden. Der Erfolg und die Grenzen der verschiedenen Modelle bei der Erklärung unterschiedlicher Aspekte dieser Ergebnisse wird aufgezeigt.

II. Experimentelle Ergebnisse

Die Temperaturabhängigkeit der absoluten Thermokraft S ferromagnetischer amorpher $\text{Fe}_x\text{Ni}_{80-x}\text{B}_{20}$ -Legierungen im Temperaturbereich $4 - 300 \text{ K}$ ist in Abb. 1 für $10 \leq x \leq 80$ dargestellt. Bei den Zusammensetzungen mit $x = 10, 13$ und $16 \text{ at\% Fe}$ ist zur Stabilisierung der amorphen Phase $1 \text{ at\% B}$ durch Si ersetzt worden. Die wesentlichen Merkmale des $S(T)$ -Verhaltens können wie folgt zusammengefaßt werden: (i) S ist im gesamten untersuchten Temperaturbereich negativ und variiert nicht-monoton mit der Temperatur, (ii) im Tieftemperaturbereich ($T < 20 \text{ K}$) zeigt S eine schwach nicht-lineare Temperaturabhängigkeit, die für $T > 20 \text{ K}$ in ein lineares Verhalten übergeht mit einem kleinen positiven Achsenabschnitt $S(0)$ und einer Steigung, deren Absolutwert nur schwach mit der Zusammensetzung variiert und mit zunehmendem Fe-Gehalt leicht ansteigt, (iii) bei mittleren Temperaturen deutet sich in der $S(T)$ -Abhängigkeit eine Aufwärtskrümmung an, die bei den meisten Zusammensetzungen innerhalb des untersuchten Temperaturbereichs sogar zu einem Extremum von $|S|$ bei einer Temperatur $T_{\max}$ führt, deren Position sich mit zunehmendem Fe-Gehalt zu höheren Temperaturen verschiebt, (iv) für $T > T_{\max}$ ist S wieder eine lineare Funktion der Temperatur mit einer positiven Stei-

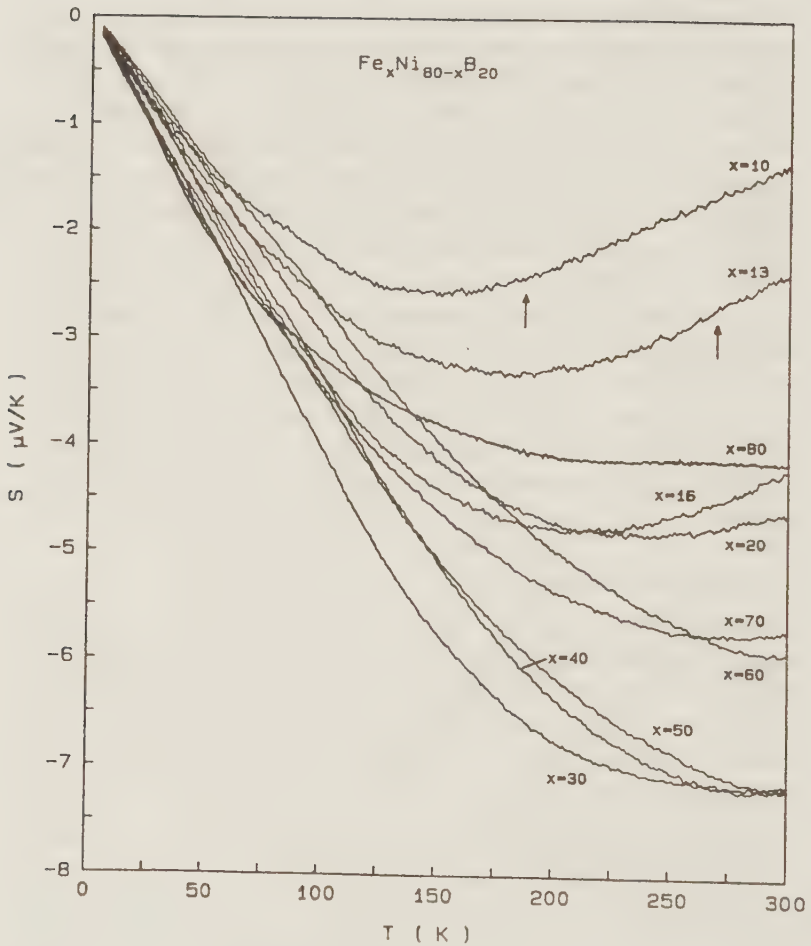


Abb. 1: Absolute Thermokraft S amorpher $\text{Fe}_x\text{Ni}_{80-x}\text{B}_{20}$ -Legierungen als Funktion der Temperatur. Bei den Zusammensetzungen mit $x = 10$, 13 und 16 at% Fe ist 1 at% B durch Si ersetzt. Die eingezeichneten Pfeile kennzeichnen die jeweilige Curie-Temperatur der Legierungen mit $x = 10$ und 13 at% Fe.

gung, die innerhalb der Fehlergrenzen unabhängig von der Zusammensetzung ist, und (v) die Legierungen mit $x = 10$ und 13 at% Fe weisen im kritischen Bereich keine Anomalie auf, obwohl diese metallischen Gläser einen wohldefinierten Phasenübergang bei der Curie-Temperatur T_C zeigen /24, 25/.

III. Diskussion

Eine ähnliche Temperaturabhängigkeit von S metallischer Gläser mit 3d Übergangsmetallen (Fe, Co und Ni) ist auch von anderen Autoren beobachtet worden /13-15/. Die nicht-magnetischen Gläser zeigen dagegen ein vergleichsweise völlig anderes Thermokraft-Verhalten /6, 7/. Über weite Temperaturbereiche ist S näherungsweise eine lineare Funktion der Temperatur und positiv mit einer typischen Größenordnung von $S < 2 \mu\text{V/K}$ bei $T = 300$ K. Angesichts der Tatsache, daß das pseudo-Kondo-Modell /3/ nicht zwischen magnetischen und nicht-magnetischen Gläsern unterscheidet, was den Einfluß der Struktur auf ihre Transporteigenschaften (wie z. B. ρ und S) angeht, legt dieser Vergleich nahe, daß solche Streuprozesse, falls sie überhaupt vorhanden sind, verglichen mit denen anderer Streumechanismen nur einen vernachlässigbaren Beitrag zur Thermokraft liefern.

Nach Maßgabe von Monte-Carlo Berechnungen der effektiven Feldverteilungsfunktion $P(H)$ in glasigen ferromagnetischen Legierungen /4/, nach denen sich selbst in konzentrierten amorphen Ferromagneten ein kleiner Teil der magnetischen Atome in Bereichen mit effektivem Null-Feld befinden, argumentieren Nagel und Mitarbeiter /14/, daß die Kondo-Streuung von Elektronen an diesen momenttragenden Atomen nicht nur die Koexistenz eines Kondo-ähnlichen Widerstandsminimums und Ferromagnetismus in diesen amorphen Materialien erklärt, sondern auch das nicht-lineare Verhalten der Thermokraft und den Unterschied im Thermokraft-Verhalten magnetischer und nicht-magnetischer Gläser. Auf der Grundlage dieser Argumentation sollte bei dem amorphen $\text{Fe}_{1-x}\text{Ni}_x\text{B}_{20}$ -System (zumindest in dem Konzentrationsbereich, in dem sowohl T_C als auch das magnetische Moment μ mit fallendem x stark abnehmen /26/) das Maximum der $P(H)$ -Verteilung nahe bei $H = 0$ lokalisiert sein und somit $P(H)$ um den Ursprung herum sehr stark variieren. Die $P(H)$ -Kurve sollte sich insgesamt mit zunehmendem Fe-Gehalt zu höheren Feldwerten verschieben und eine signifikante Reduktion des Kondo-Effekts erwarten lassen, wenn x von 10 auf 16 ansteigt. Diese Vorhersage steht offensichtlich im Widerspruch zu dem experimentellen Befund (vgl. Abb. 1). Die Interpretation der $S(T)$ -

Daten im Rahmen eines reinen Kondo-Effekts ist somit aus den folgenden Gründen nicht gerechtfertigt: (i) das Widerstandsverhältnis $(\rho(4.2K) - \rho(T_{\min}))/\rho(4.2K)$ ändert sich im Konzentrationsbereich $10 \leq x \leq 16$ nur unwesentlich /24/, und (ii) liegen die Widerstandsminima dieser Legierungen bei Temperaturen, die eine Größenordnung kleiner sind /24/ als die beobachteten Extrema in $S(T)$.

In Abb. 2 ist das Verhältnis $T_{\max}/T_c$ der amorphen $Fe_xNi_{80-x}B_{20}$ -Legierungen als Funktion der Curie-Temperatur T_c dargestellt. Bei einigen Zusammensetzungen ist $T_{\max}$ aus einer Extrapolation der Ableitung dS/dT nach höheren Temperaturen ermittelt worden (Tabelle III). Es fällt auf, daß $T_{\max}/T_c$ monoton von T_c abhängt, mit zunehmendem Ni-Gehalt ansteigt und für $x = 10$ einen Wert von ~ 0.8 erreicht. Die letztere Beobachtung ist in Übereinstimmung mit dem experimentellen Ergebnis /27/, daß der Maximalwert für $S(T)$ von kristallinem Ni bei etwa $0.83 T_c$ liegt, während er für Fe bei $\sim 0.77 T_c$ anzusiedeln ist. Dieser experimentelle Befund legt die Vermutung nahe, daß der Extremwert von $S(T)$ ferromagnetischen Ursprungs ist. In diesem Zusammenhang sollte noch erwähnt werden, daß von anderen Autoren /28/ für einige amorphe $Fe_xNi_{80-x}B_{20}$ -Legierungen eine Verknüpfung des Typs $T_{\max} = aT_c - bT_c^2$ zwischen $T_{\max}$ und T_c berichtet worden ist, deren Koeffizienten a und b nach der vorliegenden Untersuchung noch schwache Funktionen der Curie-Temperatur sind. Die genannten Argumente schließen die Möglichkeit eines Kondo-Streubeitrags zur Thermokraft nicht völlig aus, sondern zeigen vielmehr, daß für $T < T_c$ die magnetische Streuung den dominierenden Beitrag zu S liefert. Allerdings ist ein kleiner Kondo- oder pseudo-Kondo-Streubeitrag zur Thermokraft - falls vorhanden - mit dem Verhältnis $\rho^K/\rho \sim 10^{-3}-10^{-2}$ (Nordheim-Gorter Regel /21/) zu wichten, wobei ρ^K der Kondo- oder pseudo-Kondo-Beitrag zum Gesamtwiderstand ρ ist, und würde somit innerhalb der Auflösung (~ 20 nV/K) keine nachweisbare Struktur in der $S(T)$ -Abhängigkeit erzeugen. Daraus kann mit Sicherheit geschlossen werden, daß die beobachtete nicht-lineare Temperaturabhängigkeit der Thermokraft allein auf die magnetische Streuung zurückzuführen ist.

Unter Berücksichtigung dieser Argumente ist die Wahl der Modelle, in deren Rahmen die experimentellen Ergebnisse diskutiert werden können, auf drei beschränkt: das Mott'sche Modell der s-d Streuung, Kasuya's lokalisiertes Spin-Modell und die auf dem Band-Modell für Ferromagnetismus basierende Theorie von Korenblit bzw. Herzer. Bevor jedoch die Ergebnisse im Rahmen dieser Modelle diskutiert werden, sollte man noch erwähnen, daß das Ziman-Modell selbst mit der Faber-Modifikation /29/,

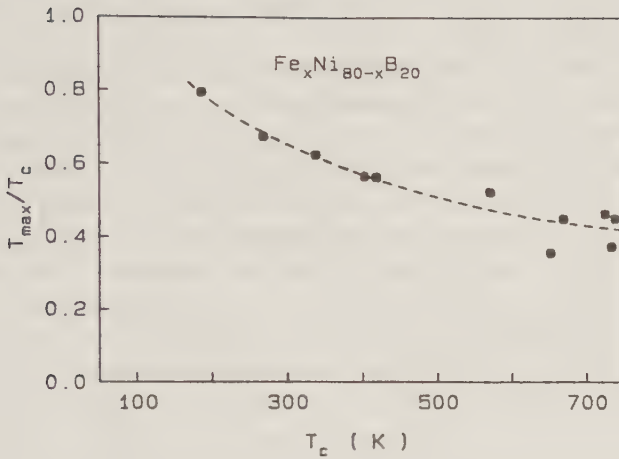


Abb. 2: Korrelation zwischen dem Verhältnis T_{max}/T_c (T_{max} kennzeichnet hier die Position des Extremums im $S(T)$ -Verlauf) und der Curie-Temperatur T_c amorpher $Fe_xNi_{80-x}B_{20}$ -, $Fe_xNi_{80-x}B_{19}Si_1$ - und $Fe_{20}Ni_{60}B_{19}P_1$ -Legierungen. Die gestrichelte Kurve durch die Datenpunkte dient nur zur Verdeutlichung des Trends der Daten.

Tabelle I: Zusammenstellung einiger für das amorphe $Fe_xNi_{80-x}B_{20}$ -System charakteristischen magnetischen /47/ und elektrischen /32, 39/ Größen. Bei den Zusammensetzungen mit $x = 10, 13$ und 16 at% Fe ist 1 at% B durch Si ersetzt worden.

x (at%)	μ/TM (μ_B)	μ_{Fe} (μ_B)	μ_{Ni} (μ_B)	D ($meV\text{\AA}^2$)	T_c (K)	ρ_0 ($\mu\Omega\text{ cm}$)	α
10	0.45	1.62	0.283	54	186.5	95.7	1.10
13	0.563	1.777	0.327	66	268.5	96.7	1.11
16	0.669	1.879	0.367	84	338	97.7	1.12
20	0.80	1.961	0.413	97	419	99.0	1.12
30	1.08	2.043	0.502	118	571	107.6	1.16
40	1.313	2.063	0.563	121	669	107.3	1.18
50	1.519	2.067	0.605	183	725	109.4	1.18
60	1.709	2.068	0.633	177	738	110.2	1.28
70	1.892	2.069	0.653	152	733	113.4	1.42
80	2.069	2.069	-	99.7	652	114.5	1.61

die zusätzlich die Temperaturabhängigkeit des Strukturfaktors mit einbezieht /10/, in keiner Weise der ausgeprägten Krümmung im $S(T)$ -Verlauf Rechnung tragen kann.

Wie beim spezifischen elektrischen Widerstand (siehe Kapitel 7) besteht auch im Verhalten der Thermokraft der amorphen $\text{Fe}_x\text{Ni}_{80-x}\text{B}_{20}$ -Legierungen eine gewisse Analogie zu dem kristallinen Ferromagnete, die für eine qualitative Diskussion hilfreich sein könnte. Bei dem amorphen Fe-Ni-B-System wird der Absolutwert der Thermokraft $|S(300 \text{ K})|$ ebenso wie bei den kristallinen Fe-Ni-Legierungen /27/ bei einer bestimmten Fe-Konzentration maximal (Abb. 3) und fällt beiderseits dieses Maximums monoton gegen den Wert der "reinen" Zusammensetzungen ab. Der Einbruch im $S(x)$ -Verhalten der kristallinen Legierungen bei $x \approx 65$ ist auf eine Phasenseparation zurückzuführen und wird bei dem amorphen System nicht beobachtet. Augenfällig ist aber auch der Unterschied in der Größenordnung ($|S|$ ist bei den amorphen Legierungen etwa um den Faktor vier kleiner als bei den kristallinen Materialien) und der Befund, daß die Thermokraft von kristallinem Fe bei Raumtemperatur positiv ist, während die korrespondierende amorphe Zusammensetzung eine negative Thermokraft aufweist. Diese $S(x)$ -Variation bei den kristallinen Fe-Ni-Legierungen ist von Kolomoets et al. /27/ im Rahmen des Mott'schen s-d Modells, das die Thermokraft gemäß

$$\begin{aligned} S(T) &= - \frac{\pi^2 k_B^2}{2 |e| E_F} T + \frac{\pi^2 k_B^2}{3 |e|} \frac{N'_{d\uparrow}(E_F) + N'_{d\downarrow}(E_F)}{N_{d\uparrow}(E_F) + N_{d\downarrow}(E_F)} T \\ &= S^D(T) + S^M(T) \end{aligned} \quad (1)$$

mit den partiellen Zustandsdichten $N_{d\sigma}(E_F)$ der beiden d-Unterbänder und deren Ableitungen $N'_{d\sigma}(E_F) = dN_{d\sigma}(E)/dE_F$ bei der Fermi-Energie E_F in Beziehung setzt, analysiert und daraus eine hypothetische Bandstruktur abgeleitet worden, die scheinbar mit Magnetisierungsdaten vereinbar ist. Da $S^D(T)$ selbst bei einer Temperatur von $T = 4.2 \text{ K}$ zu klein ist, um dem beobachteten Wert für S gerecht zu werden, liefert $S^M(T)$ den Hauptbeitrag zu S und ist somit im wesentlichen für die beträchtliche Zusammensetzungsabhängigkeit der Thermokraft und ihre nicht-lineare Temperaturabhängigkeit verantwortlich. Das Maximum in $|S(x)|$ bei mittleren Fe-Konzentrationen ist dann nach dieser Interpretation darauf zurückzuführen, daß die Fermi-Energie bei dieser Zusammensetzung die obere Bandkante eines der beiden d-Teilbänder schneidet und große Werte der entsprechenden Ableitung $N'_{d\sigma}(E_F)$ verursacht. Diese Modellvorstel-

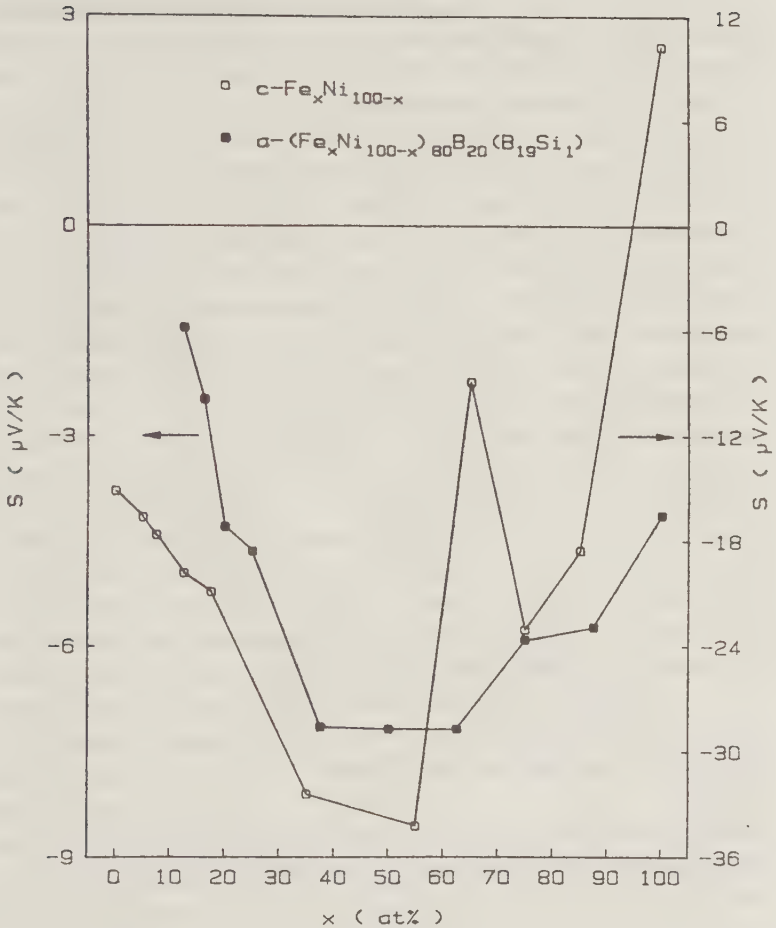


Abb. 3: Konzentrationsabhängigkeit der absoluten Thermokraft S amorpher $(\text{Fe}_x\text{Ni}_{100-x})_{80}\text{B}_{20}(\text{B}_{19}\text{Si}_1)$ - (geschlossene Kreise) und kristalliner $\text{Fe}_x\text{Ni}_{100-x}$ -Legierungen (offene Kreise) bei Raumtemperatur. Man beachte die für beide Systeme unterschiedliche Skalierung der Ordinate.

lungen könnte man auch auf die in dieser Arbeit untersuchten amorphen $\text{Fe}_x\text{Ni}_{80-x}\text{B}_{20}$ -Legierungen übertragen und die vergleichsweise kleineren Werte für $|S(x)|$ durch eine weniger stark strukturierte Zustandsdichte bei der Fermi-Energie qualitativ erklären. Angesichts der von Fujiwara /30/ für eine amorphe $\text{Fe}_{80}\text{B}_{20}$ -Legierung im Rahmen einer paramagnetischen Bandstrukturrechnung ermittelten Zustandsdichte $N(E)$, die gegenüber kristallinen Materialien relativ strukturlos ist, würde diese Interpretation durchaus plausibel erscheinen.

Trägt man jedoch die Thermokraft S der amorphen $\text{Fe}_x\text{Ni}_{80-x}\text{B}_{20}$ -Legierungen als Funktion der Konzentration bei verschiedenen Bezugstemperaturen auf (Abb. 4), so zeigt sich, daß das bei Raumtemperatur zu beobachtende Maximum von $|S(x)|$ bei tiefen Temperaturen verschwindet und $|S(50\text{ K})|$ nur noch tendentiell ein schwaches Anwachsen mit zunehmendem Fe-Gehalt erkennen läßt. Gerade die Konzentrationsabhängigkeit von S bei tieferen Temperaturen sollte aber im Rahmen des Mott-Modells Aufschluß über die Bandstruktur geben, da hier alle untersuchten Proben ferromagnetisch sind und sich in einem vergleichbaren magnetischen Zustand befinden. Nach Messungen der spezifischen Wärmekapazität an dem amorphen $\text{Fe}_x\text{Ni}_{80-x}\text{B}_{20}$ -System /31/ zeichnet sich für die Zustandsdichte $N(E_F)$ bei der Fermi-Energie (Nenner in Gl. (1)) auf der Ni-reichen Seite ($x \leq 50$ at% Fe) ein leichter, näherungsweise linearer Zuwachs mit x ab, der für $x \geq 50$ at% Fe in einen stärkeren Anstieg mit x übergeht (eine Zusammenstellung dieser Ergebnisse ist in /32/ zu finden). Dieser Zuwachs müßte durch ein Anwachsen des Zählers im zweiten Term von Gl. (1) kompensiert werden, um die experimentellen Ergebnisse zu erklären. Dies ist aber angesichts neuerer Untersuchungen der spontanen magnetischen Widerstandsanisotropie an diesen Legierungen /32/ unwahrscheinlich, die Aussagen über den magnetischen Zustand dieser Materialien ermöglichen. Nach Kaul et al. /32/ sind die Ni-reichen Zusammensetzungen schwache Ferromagnete im Sinne des Stoner-Kriteriums, während sich auf der Fe-reichen Seite ein Übergang zu starkem Ferromagnetismus andeutet. Demzufolge sollte die Ableitung $N'_d(E_F)$ der Zustandsdichte bei der Fermi-Energie sehr stark mit dem Fe-Gehalt variieren und der Mott'sche Beitrag zur Thermokraft bei tieferen Temperaturen im Gegensatz zu dem experimentellen Befund eine ausgeprägte Konzentrationsabhängigkeit aufweisen.

Ohne die genaue Kenntnis der Bandstruktur kann eine Diskussion der Thermokraft im Rahmen des Mott'schen s-d Modells nicht über einen qualitativen Charakter hinausgehen und wird immer unbefriedigend bleiben.

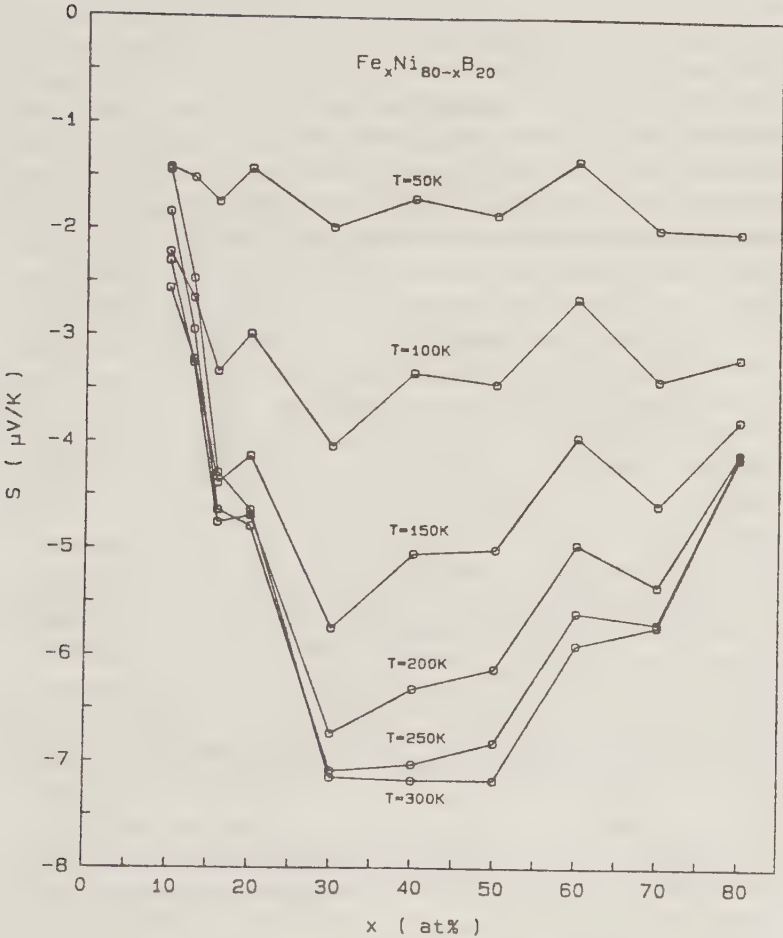


Abb. 4: Konzentrationsabhängigkeit der absoluten Thermokraft S amorpher $\text{Fe}_x\text{Ni}_{80-x}\text{B}_{20}$ -Legierungen bei verschiedenen Bezugstemperaturen. Bei den Zusammensetzungen mit $x = 10, 13$ und 16 at% Fe sind 1 at% der Metalloide durch Si ersetzt ($\text{B}_{20} \rightarrow \text{B}_{19}\text{Si}_1$).

Die obigen Überlegungen schließen eine Erklärung der experimentellen Ergebnisse mit den Mott'schen Vorstellungen nicht völlig aus, weisen aber auf signifikante Thermokraftbeiträge auf Grund anderer Wechselwirkungsmechanismen hin, die in diesem Modell nicht berücksichtigt werden. Dazu gehört die Wechselwirkung der Leitungselektronen mit den kollektiven Anregungen des Spin-Systems (Magnonen), die im Spinwellen-Gebiet wesentlich für die Größenordnung und den Temperaturgang des magnetischen Beitrags ρ_{mag} zum spezifischen elektrischen Widerstand ρ verantwortlich zeichnet (siehe Kapitel 6 und 7). Für kristalline Ferromagnete ist dieser magnetische Beitrag zu S von Kasuya /17/ berechnet und von Maeda et al. /18/ erfolgreich an die Thermokraft kristalliner Fe-Ni Legierungen im Tieftemperaturbereich angepaßt worden. Wegen der Ähnlichkeit im Thermokraft-Verhalten zwischen kristallinen und amorphen Ferromagneten liegt es nahe, eine erste Erklärung der $S(T)$ -Abhängigkeit bei den ungeordneten Materialien in den für kristalline Systeme ausgearbeiteten theoretischen Modellen zu suchen. Die dadurch bedingten Einschränkungen sind nicht so gravierend, da in den von Kasuya /17/ abgeleiteten $S(T)$ -Beziehungen, wie weiter unten gezeigt wird, die auftretenden magnetischen Größen durch effektive Meßgrößen ausgedrückt werden können.

Ausgehend von einer auf dem lokalisierten Spin-Modell aufbauenden Theorie, in der die inelastische Streuung (auf Grund der Energie-Absorption oder -Emission der durch ein inneres Molekularfeld erzeugten magnetischen Ionen-Niveaus) und die elastische Spinunordnungs-Streuung für Elektronen entgegengesetzter Spinrichtung unterschiedlich ist, erhält Kasuya /17/ unter Ausnutzung der Spinwellen- bzw. Molekularfeld-Näherung für die Thermokraft bei hinreichend tiefen Temperaturen ($T \ll T_c$) und bei Temperaturen in der Nähe von T_c ($T \lesssim T_c$) die folgenden Beziehungen:

$$S(T) = - \frac{\pi^2 k_B^2}{3 |e| E_F} T \left\{ 1 + \left(\frac{q_0}{k_F} \right)^2 \frac{c(g-1) J_{sd}(0) \langle j_z \rangle}{2 \epsilon_0} \left[\left(\frac{\phi_1 \phi_3}{\phi_2^2} - 1 \right)^{-1} + 3 \left(\frac{4\pi^2 \phi_1}{\phi_3} + 1 \right)^{-1} \right] \right\}$$

$$= S^d(T) + S^m(T) \quad \text{für } T \ll T_c, \quad (2)$$

mit

$$\phi_n = \int_{x_0}^{x_1} \frac{x^n dx}{(e^x - 1)(1 - e^{-x})}$$

und

$$S(T) = - \frac{\pi^2 k_B^2}{3 |e| E_F} T - \frac{2 k_B c (g-1) J_{sd}(0) \langle j_z \rangle}{|e| E_F} \frac{1-e^{-x}}{1+e^{-x}}$$

$$= S^d(T) + S^m(T) \quad \text{für } T \leq T_c, \quad (3)$$

wobei $J_{sd}(0)$ die Fouriertransformierte des sd Austauschintegrals $J_{sd}(r)$ für $q = 0$ ist, $\langle j_z \rangle$ der Erwartungswert der z-Komponente des lokalen Gesamtdrehimpulses der magnetischen Ionen, g der Landé-Faktor und c die Konzentration der magnetischen Ionen; die Konstante ϵ_0 und die Debye'sche cutoff Wellenzahl q_0 sind durch die Spinwellen-Dispersionsrelation $\epsilon = \epsilon_0 (q/q_0)^2 = Dq^2$ miteinander verknüpft, D ist die Spinwellen Steifigkeitskonstante,

$$x = 3 \frac{T_p}{T} \frac{\langle j_z \rangle}{S(S+1)},$$

T_p die paramagnetische Curie-Temperatur, S der lokalisierte Spin, $x_1 = \epsilon_0 / (k_B T)$,

$$x_0 = x_1 \frac{c(g-1) J_{sd}(0) \langle j_z \rangle k_F}{q_0 E_F},$$

und k_F die Fermi Wellenzahl. Die Gln. (2) und (3) zeigen klar, daß die Thermokraft neben dem normalen für isotrope Streuung charakteristischen Diffusionsterm $S^d(T) = A T$ (der beiden Tief- und Hochtemperaturausdrücken gemeinsam ist) einen magnetischen Term $S^m(T)$ enthält, der die sd-Austauschwechselwirkung charakterisiert und nach dieser Theorie im wesentlichen für die außergewöhnliche Temperaturabhängigkeit der Thermokraft magnetischer Systeme verantwortlich zeichnet. Es wurde eine quantitative Anpassung von Gl. (2) und (3) an die experimentellen Daten für die Zusammensetzungen mit $x \leq 16$ at% Fe versucht, da in diesem Konzentrationsbereich das gemessene Temperaturintervall den Phasenübergang mit einschließt oder zumindest bis nahe an T_c Daten vorliegen. Außerdem zeigen an diesen Legierungen durchgeführte Widerstands- /24/ und Magnetisierungsmessungen /25, 33/ klar, daß die Heisenberg-Näherung (und damit auch die Kasuya Theorie) für amorphe Ferromagnete besser geeignet ist als für kristalline (für die die zu den Gln. (2) und (3) führende Theorie ursprünglich vorgeschlagen worden ist).

Unter der Annahme, daß der Bahndrehimpuls der 3d Elektronen vollständig gequencht ist, kann man $g = 2$ setzen und den Gesamtdrehimpuls

Tabelle II: Zusammenstellung der aus der Anpassung von Gl. (2) und (3) des Textes an die experimentellen Thermokraft-Daten amorpher $\text{Fe}_{x\text{Ni}_{80-x}\text{B}_{19}\text{Si}_1}$ -Legierungen ermittelten Parameterwerte und der den Referenzen /25/ und /33/ entnommenen magnetischen Größen. Die paramagnetischen Curie-Temperaturen T_p sind aus dem Widerstandsverhalten dieser Legierungen /24/ abgeschätzt worden, und die in den runden Klammern stehenden Größen sind die aus A berechneten Fermi-Energien.

x	D	T_p	T_c	$S(T_c)/T_c$	A	$J_{sd}(0)/E_F$	k_F	a	b	Fitbereich
(at%)	(meVÅ ²)	(K)	(K)	(10 ⁻² μV/K ²)	(10 ⁻² μV/K ²)	(10 ⁻²)	(Å ⁻¹)	(10 ⁻² μV/K ²)	(μV/K)	(T/T _c)
10	53±2	340±15	186.5±0.3	-1.3±0.1 (1.9 eV)	-1.3±0.1	1.2±0.02	0.15±0.02	1.0±0.2	-4.3±0.1	1.02-1.61
13	66±2	389±15	268.5±0.2	-1.0±0.1 (2.4 eV)	-1.0±0.1	2.2±0.02	0.17±0.02	1.1±0.2	-5.5±0.1	0.82-1.12
16	78±2	393±15	338.0±1.0	-1.2±0.1 [#] (2.0 eV)	-1.2±0.1	3.0±0.03	0.20±0.02	0.6±0.2	-6.2±0.1	0.65-0.89

[#] Aus der Extrapolation der $S(T)$ -Daten nach $T = T_c$.

$\langle j_z \rangle$ durch $\langle S^z \rangle = \langle S \rangle M(T)/M(0)$ ersetzen, wobei $M(T)$ die spontane Magnetisierung bezeichnet. Zur Datenanpassung wird die folgende Strategie eingeschlagen. Zunächst wird der Molekularfeld-Ausdruck (Gl. (3)) im Temperaturbereich $0.6T_c \leq T \leq T_c$ mittels eines "least-squares fit" Rechnerprogramms an die experimentellen Daten angepaßt, wobei der Koeffizient A und das Verhältnis J_{sd}/E_F als freie Parameter behandelt werden. Setzt man $S \approx 1$, $c = 0.8$, nimmt die aus den Widerstandsmessungen /24/ abgeschätzten T_p -Werte und die in /25, 33/ berichteten $M(T)/M(0)$ -Daten der vorliegenden Legierungen, so erhält man die in Tabelle II angegebenen Werte für A und $J_{sd}(0)/E_F$. Ein einfacher Test für die mit dieser Anpassungsprozedur erhaltenen A -Werte wird dadurch ermöglicht, daß S^m in Gl. (3) bei T_c verschwindet, so daß A nichts anderes als $S(T_c)/T_c$ ist. Ein Blick auf Tabelle II zeigt, daß (i) die entsprechenden Werte für A und $S(T_c)/T_c$ in ausgezeichnete Übereinstimmung zueinander sind, (ii) die aus A ermittelten Werte für E_F (in Tabelle II in Klammern stehend) die erwartete Größenordnung um mindestens einen Faktor drei unterschätzen, und (iii) das Verhältnis $J_{sd}(0)/E_F$ linear mit x ansteigt und Werte annimmt, die durchaus vergleichbar sind mit den für kristalline Fe-Ni-Legierungen /18/ beobachteten Werten und ebenfalls mit theoretischen Abschätzungen ($10^{-2} - 10^{-1}$) für reine Heisenberg-Ferromagnete in der Näherung freier Elektronen /17/. Während die Übereinstimmung zwischen A und $S(T_c)/T_c$ und zwischen den experimentellen und theoretischen Werten für $J_{sd}(0)/E_F$ in Kasuya's Theorie in gewisser Weise implizit angenommen wird, deutet die Beobachtung (ii) möglicherweise auf die wohlbekannte Tatsache hin, daß die Molekularfeld-Näherung für Temperaturen in der unmittelbaren Umgebung von T_c nicht geeignet ist.

Da der Term $S^d(T)$ beiden Tief- und Hochtemperaturausdrücken (2) und (3) gemeinsam ist, wird $S^d(T)$ von den beobachteten $S(T)$ -Daten subtrahiert, um auf die experimentell bestimmte Variation des magnetischen Beitrags $S^m(T)$ zur Thermokraft mit der Temperatur zu schließen. Die so bei verschiedenen Temperaturen ermittelten S^m -Werte sind in Abb. 5 als Funktion der reduzierten Temperatur T/T_c dargestellt. Dieser Abbildung ist zu entnehmen, daß $|S^m(T)|$ und nicht $|S(T)|$, wie von Babic et al. /16/ behauptet wurde, ein Maximum bei $T_{max} \approx 0.5 T_c$ durchläuft, während der Maximalwert $|S^m_{max}|$ mit zunehmender Fe-Konzentration ansteigt und sich die Position des Maximums T_{max} leicht zu tieferen Temperaturen verschiebt. Im nächsten Schritt wird nun überprüft, ob das Kasuya-Modell die Temperaturabhängigkeit von S^m im Spinwellen-Bereich korrekt voraussagt. Dazu wird Gl. (2) unter Zuhilfenahme der magnetischen Daten

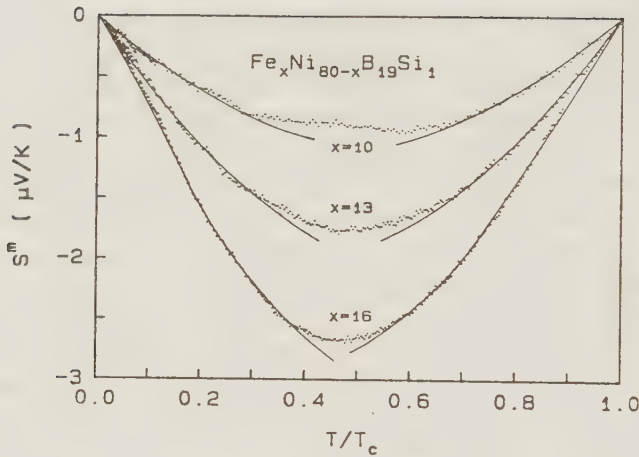


Abb. 5: Magnetischer Anteil S^m zur Thermokraft amorpher $\text{Fe}_x\text{Ni}_{80-x}\text{B}_{19}\text{Si}_1$ Legierungen ($x = 10, 13$ und 16 at% Fe) als Funktion der reduzierten Temperatur T/T_c . Die durchgezogenen Kurven durch die Datenpunkte repräsentieren die durch die Gln. (2) und (3) vorausgesagte theoretische Variation mit den in Tabelle II angegebenen Parametern.

von Ref. 33, den $J_{sd}(0)/E_F$ -Werten /34/ aus den Hochtemperaturfits (Tabelle II) und dem aus veröffentlichten Schallgeschwindigkeitsdaten ähnlicher amorpher Systeme abgeschätzten zusammensetzungsunabhängigen Wert /35/ für $\epsilon_0 = Dq_0^2$ von ~ 170 meV für $T \leq 0.4 T_c$ an die $S^m(T)$ -Daten angepaßt, wobei k_f in Gl. (2) bei der Minimalisierung der Abweichungen der berechneten Thermokraft von den Meßdaten als freier Parameter behandelt wird. Die in Gl. (2) auftretenden bestimmten Integrale ϕ_n sind mit Hilfe einer Variante des Romberg'schen Integrationsverfahrens numerisch berechnet worden. In Abb. 5 ist die von den Gln. (2) und (3) für die in Tabelle II zusammengestellten Anpassungsparameter vorhergesagte theoretische Variation von S^m mit der Temperatur zusammen mit den experimentellen Daten dargestellt. Wie man dieser Abbildung entnehmen kann, geben die theoretischen Kurven die experimentelle Variation ziemlich gut wieder. Überdies sind die aus den Tieftemperatur-Fits ermittelten k_f -Werte mit den von Maeda und Somura /18/ für kristalline Fe-Ni-Legierungen erhaltenen Werten durchaus vergleichbar; allerdings wird dieser Er-

folg in beiden Fällen mit viel zu kleinen Werten für den Fermi-Wellenvektor k_F erlaubt, um die Näherung freier Elektronen für 3d Übergangsmetall-Legierungen zu rechtfertigen.

Um die vorliegenden Ergebnisse mit der Theorie in Einklang zu bringen, ist Gl. (2) in der Weise an die Tieftemperatur $S^m(T)$ -Daten angepaßt worden, daß k_F auf $1.5 \text{ \AA}^{-1}$ fixiert und das Verhältnis $J_{sd}(0)/E_F$ als temperaturabhängige Größe behandelt wurde. Im Gegensatz zu der erwarteten Variation von $J_{sd}(0)/E_F$ ($J_{sd}(0)/E_F$ sollte mit steigender Temperatur T fallen, da $J_{sd}(0)$ schneller abnimmt als E_F) nimmt dieses Verhältnis mit steigender Temperatur zu, so daß der Wert bei hohen Temperaturen etwa um den Faktor drei größer ist als der Tieftemperaturwert, der wiederum den Wert der Hochtemperaturfits (Tabelle II) um etwa eine Größenordnung übersteigt. Die beschriebenen Inkonsistenzen zwischen Theorie und Experiment können vermutlich entweder auf die völlige Vernachlässigung der Elektron-Phonon Streuung /26/ oder die bei der Integration der Relaxations-Terme der kinetischen Gleichungen im Kasuya Modell gemachten Näherungen, oder auf beides zurückgeführt werden. Einige dieser Einschränkungen sind später von Abel'skii und Irkhin /37/ durch die Berücksichtigung der Elektron-Phonon Streuung und genauerer Berechnung des Hochtemperatur-Limes ($T \lesssim T_c$) in Molekularfeld-Näherung beseitigt worden. Aber ihr abgeleiteter Ausdruck für die Thermokraft enthält eine Reihe unbekannter Parameter und ist so kompliziert, daß ein direkter Vergleich mit dem Experiment nicht ohne eine mühsame Anpassungsprozedur und zusätzliche Annahmen möglich.

Die Thermokraft amorpher Ferromagnete ist bisher in nur wenigen Arbeiten /19, 20, 38/ in verschiedenen Näherungen theoretisch untersucht worden. Den Rechnungen von Korenblit /19/ liegt das von Mott /2/ eingeführte Zwei-Band Modell zugrunde, nach dem die Bandstruktur der 3d Übergangsmetalle durch ein breites s- und ein schmales d-Band mit gemeinsamer Fermi-Energie charakterisiert werden kann und die beweglichen Ladungsträger zugleich Träger der magnetischen Eigenschaften sind. Wegen der Verhältnisse der effektiven Massen wird jedoch vom Bandcharakter der d-Zustände abgesehen und die d-Elektronen im Rahmen des Heisenberg-Modells durch ihre am Ort R_i lokalisierten Spinnomente S_i beschrieben. Die Kopplung zwischen den lokalisierten atomaren Spinnomenten und den Spins der Leitungselektronen wird in der Gestalt des sd-Austauschoperators berücksichtigt, der zu einer Polarisation des s-Bandes Anlaß gibt. Das ungewöhnliche Verhalten der Thermokraft amorpher ferromagnetischer Legierungen wird dann dem Vorhandensein zweier Ele-

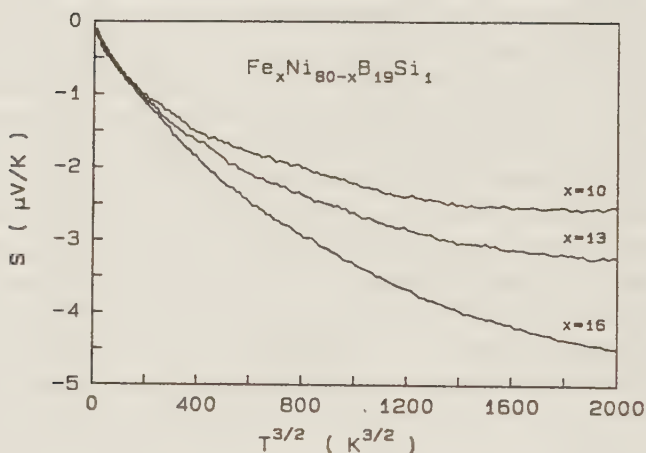


Abb. 6: Absolute Thermokraft S amorpher $\text{Fe}_x\text{Ni}_{80-x}\text{B}_{19}\text{Si}_1$ -Legierungen als Funktion von $T^{3/2}$ für $x = 10, 13$ und 16 at% Fe.

mentarprozesse zugeschrieben: der inelastischen Elektron-Magnon Streuung an den Wirtsatomen und der elastischen Streuung der Elektronen an den gelösten Atomen, die von der Richtung der Elektronenspins abhängt. Der durch Lösung der Boltzmann-Gleichungen für Spin auf ($\uparrow$) und Spin ab ($\downarrow$) Elektronen abgeleitete Ausdruck für die Thermokraft für den Fall starker Unordnung (d. h., wenn die elastische Streuung über die inelastische dominiert) ist gegeben durch

$$S(T) = \frac{k_B}{e} \frac{\tau_{\uparrow} - \tau_{\downarrow}}{t}, \quad (4)$$

wobei τ_{σ} die inelastische Relaxationszeit für Elektronen mit Spin σ und t die mittlere Relaxationszeit ist. Obgleich Gl. (4) korrekterweise für glasige Ferromagnete eine nicht-lineare Variation /19/ von S mit T voraussagt, so erfüllt sie in vielerlei Hinsicht entschieden nicht die Erwartungen. Bei tiefen Temperaturen sollte nach Ref. /19/ Gl. (4) von der Form $S(T) \sim T^{3/2}$ sein; aber die in Abb. 6 exemplarisch für die Zusammensetzungen mit $x = 10, 13$ und 16 at% Fe dargestellte $S = f(T^{3/2})$ -Abhängigkeit zeigt klar, daß diese Relation zwischen S und T selbst bei den tiefsten Temperaturen nicht erfüllt ist. Im Gegensatz zu dem großen Wert von S bei T_c ($\sim -2.5 \mu\text{V/K}$) ergibt Gl. (4) einen verschwindend kleinen Wert für $S(T_c)$, da bei T_c $\tau_{\uparrow} \approx \tau_{\downarrow}$ ist. Darüber hinaus erklärt

dieses Modell nicht die starke Konzentrationsabhängigkeit von $S_{\max}$ (Abb. 1), wie durch die Tatsache verdeutlicht wird, daß man für die hier betrachteten Legierungen einen Wert von $|S_{\max}| \approx 10 \mu V/K$ erhält, wenn man nach Korenblit $|19/(\tau_+ - \tau_-)/t \sim \rho^m/\rho_0|$ setzt (wobei ρ_0 und ρ^m für den Restwiderstand bzw. Spinwellenwiderstand stehen) und die experimentellen Werte für ρ_0 und ρ^m aus Ref. /24/ einsetzt.

Herzer /20/ hat die Rechnungen von Korenblit wesentlich durch eine genauere Ableitung der Streuraten und Berücksichtigung kohärenter Elektron-Magnon Streuprozesse und der Potentialstreuung erweitert. Durch Lösung der gekoppelten Boltzmann'schen Transportgleichungen für beide s-Unterbänder erhält Herzer einen Ausdruck für die Thermokraft amorpher Ferromagnete, der sich gemäß

$$S(T) = S^{nm}(T) + S^m(T) \quad (5)$$

additiv aus nicht-magnetischen (nm) und magnetischen (m) Beiträgen zusammensetzt. Im Spinwellen-Bereich zerfällt der aus dem antisymmetrischen Teil der Elektron-Magnon Streuraten resultierende magnetische Beitrag

$$S^m(T) = - S_0^m \left\{ \frac{T}{\Theta} I_2(T_0/T, \infty) + a_1(2k_F) \left(\frac{k_F a}{\pi} \right)^2 \left(\frac{T}{\Theta} \right)^{3/2} I_{5/2}(0, \infty) \right\} \quad (6)$$

mit

$$S_0^m = \frac{k_B}{2|e|} \frac{\rho_0^c}{\rho_0} \frac{\alpha-1}{\alpha+1} \frac{\langle S_{ic} \rangle}{(k_F a)^2}$$

in einen kohärenten (erster Term in der geschweiften Klammer) und einen inkohärenten (zweiter Term in der geschweiften Klammer) Anteil. ρ_0 bezeichnet hier den Restwiderstand und ρ_0^c einen charakteristischen Widerstand, der über die Beziehung

$$\rho_0^c = \frac{3\pi}{2} \frac{m\Omega_c}{e^2 \hbar E_F} J_{sd}^2 \quad (7)$$

mit dem die Stärke der sd-Austauschwechselwirkung charakterisierenden Parameter J_{sd} verknüpft ist. Durch das Auftreten des gewichteten Integrals

$$a_n(2k_F) = (n+1) \int_0^1 d\left(\frac{q}{2k_F}\right) \left(\frac{q}{2k_F}\right)^n a_m(q) \quad (8)$$

über den longitudinalen Anteil des statischen magnetischen Strukturfaktors

$$a_m(q) = \frac{1}{N} \sum_{i,j} \frac{S_i S_j}{\langle S_{ic}^2 \rangle} \exp(-iq(R_i - R_j)) - N \delta_{q,0} \quad (9)$$

hängt die Größenordnung des inkohärenten Beitrags empfindlich von der Konzentration der magnetischen Atome und der vorliegenden Nahordnung ab. Bei den in der geschweiften Klammer auftretenden Integralen

$$I_n(a,b) = \int_a^b \frac{x^n e^x dx}{(e^x - 1)^2} \quad (10)$$

trägt die im kohärenten Term zu berücksichtigende untere Integralgrenze

$$T_0/T = D \langle S_{ic}^2 \rangle \frac{k_F^2}{k_B} \left(\frac{J_{sd}}{E_F} \right)^2 / T \quad (11)$$

der Tatsache Rechnung, daß für die kohärente Streuung eines Leitungselektrons vom $s\uparrow$ - ins $s\downarrow$ -Band (und auch für den umgekehrten Prozeß) ein Magnon mit einem Mindestimpuls $q_{\min} = |k_F^\uparrow - k_F^\downarrow|$ erforderlich ist. Die Temperaturskala ist mit der über die Spinwellen-Steifigkeitskonstante D und dem mittleren atomaren Abstand a ($\Omega_c = a^3$) definierten charakteristischen Temperatur

$$\theta = D/(k_B a^2) \quad (12)$$

normiert. Desweiteren bezeichnen k_F und E_F wieder den Fermi-Wellenvektor und die Fermi-Energie, $\langle \dots \rangle_c$ den Konfigurationsmittelwert, und k_B , e , $\hbar$ und m haben ihre übliche Bedeutung. Die Größenordnung von S^m hängt empfindlich von dem Verhältnis der partiellen Restwiderstände $\alpha = \rho_o^\uparrow/\rho_o^\downarrow$ ab, das für schwach ferromagnetische Systeme ungefähr eins ist, während bei stark ferromagnetischen Systemen i. a. $\alpha > 1$ gilt.

Ein für die Temperaturabhängigkeit des kohärenten Beitrags zu S^m relevanter Parameter ist die charakteristische Temperatur T_0 . Untersucht man das asymptotische Verhalten von $S^m(T)$, so erhält man

$$S^m(T) = - S_o^m \begin{cases} \frac{T_0^2}{\theta T} \exp(-T_0/T) + \frac{5}{2} \Gamma(\frac{5}{2}) \zeta(\frac{5}{2}) a_1 (2k_F) \left(\frac{ak_F}{\pi} \right)^2 \left(\frac{T}{\theta} \right)^{3/2} & \text{für } T \ll T_0 \quad (13a) \\ 2 \zeta(2) \frac{T}{\theta} - \frac{T_0}{\theta} + \frac{5}{2} \Gamma(\frac{5}{2}) \zeta(\frac{5}{2}) a_1 (2k_F) \left(\frac{ak_F}{\pi} \right)^2 \left(\frac{T}{\theta} \right)^{3/2} & \text{für } T \gg T_0 \quad (13b) \end{cases}$$

Unterhalb T_0 frieren die kohärenten Streubeiträge der Elektron-Magnon

Wechselwirkung aus, während sie oberhalb T_0 einen negativen, in der Temperatur linearen Beitrag zur Thermokraft liefern mit einem scheinbaren positiven Achsenabschnitt

$$S^m(0) = (T_0/\theta) S_0^m \quad . \quad (14)$$

Abschätzungen von Herzer /20/ zeigen, daß die kohärenten und inkohärenten magnetischen Thermokraftbeiträge von gleicher Größenordnung sind und durch den Charakter ihrer Temperaturabhängigkeit aus dem experimentellen Thermokraft-Verlauf unterscheidbar sein sollten. Die experimentellen Ergebnisse an dem amorphen $\text{Fe}_x\text{Ni}_{80-x}\text{B}_{20}$ -System zeigen indes im Spinwellen-Bereich eine dominante lineare Temperaturabhängigkeit für S , der eine in der Temperatur nur schwach variierende Funktion überlagert ist, die aber auf Grund der Streuung der Daten nicht eindeutig identifiziert werden kann. Eine Anpassung von Gl. (13b) an die experimentellen Daten erlaubt keine Separation eines $T^{3/2}$ -Terms, da sowohl die Größenordnung als auch das Vorzeichen dieses Terms sehr stark von dem betrachteten Temperaturintervall abhängen. In diesem Sinne schließen die experimentellen Daten dominante inkohärente Elektron-Magnon Streubeiträge zur Thermokraft aus.

Zu den gleichen Schlußfolgerungen kommen auch Svoboda et al. /23/, die die Thermokraft des hier untersuchten amorphen $\text{Fe}_x\text{Ni}_{80-x}\text{B}_{20}$ -Systems für den Konzentrationsbereich $40 \leq x \leq 70$ bei tiefen Temperaturen ($2 \leq T \leq 8$ K) vermessen haben; allerdings sollte in diesem Temperaturbereich, wie weiter unten gezeigt wird, der Übergang zwischen den asymptotischen Beziehungen (13a) und (13b) für S^m stattfinden, so daß hier Gl. (6) für eine konsistente Diskussion benutzt werden muß. In Anbetracht der Tatsache, daß der magnetische Beitrag zum Gesamtwiderstand dieser Klasse von Legierungen auf der Ni-reichen Seite ausschließlich durch die Summe aus dem elastischen und inkohärenten Anteil der Elektron-Magnon Streurate bestimmt wird (siehe Kapitel 7) erscheint der obige experimentelle Befund befremdlich.

Nach Gl. (5) sind in der Diskussion des Thermokraft-Verhaltens auch nicht-magnetische Beiträge

$$S^{nm}(T) = \frac{\pi^2}{3} \frac{k_B}{|e|} \xi \frac{k_B T}{E_F} \quad (15)$$

zu berücksichtigen, die näherungsweise linear mit der Temperatur variieren. Im Rahmen des Ziman-Modells /1/ ist der thermoelektrische Parameter

$$\xi = \frac{\partial \ln \rho(E)}{\partial \ln E} \bigg|_{E=E_F} \quad (16)$$

von der Größenordnung eins, wobei ξ in niederresistiven Systemen negativ und positiv in hochresistiven Systemen ist /6, 7/. Mit $E_F \approx 8$ eV gilt dann näherungsweise

$$S^{nm}(T) \approx 3 \times 10^{-3} \xi T \quad (\mu V/K^2) \quad .$$

Ein Vergleich dieser Relation mit den experimentellen Ergebnissen zeigt, daß der nicht-magnetische Thermokraft-Beitrag im Spinwellen-Gebiet allenfalls 10% von $S(T)$ ausmacht und der überwiegende Rest im Rahmen von Herzer's theoretischem Modell auf den magnetischen Thermokraft-Beitrag (Gl. (6)) zurückzuführen ist.

Gl. (6) beschreibt den magnetischen Thermokraftbeitrag S^m als Funktion physikalischer Größen, die für das vorliegende $Fe_xNi_{80-x}B_{20}$ -Legierungssystem entweder aus anderen Experimenten bekannt sind oder aus theoretischen Erwägungen heraus hinreichend genau abgeschätzt werden können. Dadurch ist hier ein quantitativer Vergleich dieses Beitrags mit den experimentellen Ergebnissen möglich. Alle in Gl. (6) auftretenden magnetischen Größen wie die mittleren magnetischen Momente (μ_{Fe} , μ_{Ni}) und die Spinwellen-Steifigkeitskonstante (D) sind von Deppe et al. /47/ durch Untersuchungen der Magnetisierung und des Mößbauereffekts experimentell ermittelt worden. Die der Literatur zu entnehmenden Zahlenangaben über den Restwiderstand ρ_0 der amorphen $Fe_xNi_{80-x}B_{20}$ -Legierungen sind sehr ungenau. Hier werden daher die für das amorphe $Fe_xNi_{80-x}B_{16}Si_4$ -System ermittelten ρ_0 -Werte /39/ benutzt, die sicherlich im Rahmen der Meßgenauigkeit ($\sim 5\%$) mit denen der $a-Fe_xNi_{80-x}B_{20}$ -Legierungen übereinstimmen. Für die Konstante ρ_0^C wird der aus Untersuchungen des Widerstandsverhaltens amorpher $Fe_xNi_{80-x}B_{16}Si_4$ -Legierungen mit Zusammensetzungen in der Nähe der Perkolationsgrenze bestimmte Wert $\rho_0^C \approx 31.3 \mu\Omega \text{ cm}$ (siehe Kapitel 7) angesetzt und $a_1(2k_F)$ unter der Annahme einer statistischen Verteilung von magnetischen Momenten auf einer amorphen Matrix abgeschätzt, d. h.

$$a_m(q) = \frac{\langle S_{ic}^2 \rangle}{\langle S_{ic} \rangle^2} - 1 + a(q) \quad .$$

Da das gewichtete Integral (Gl. (8)) über den statischen geometrischen Strukturfaktor $a(q)$ in guter Näherung eins ergibt (siehe Abb. 7), gilt $a_1(2k_F) \approx \langle S_{ic}^2 \rangle / \langle S_{ic} \rangle^2$. Das Verhältnis α der partiellen Restwiderstands-

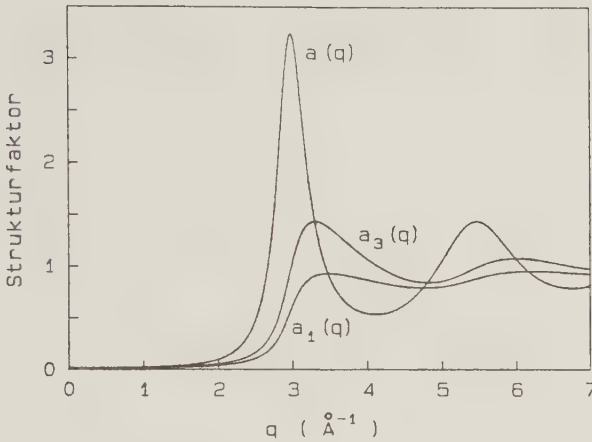


Abb. 7: Typische Variation des statischen geometrischen Strukturfaktors $a(q)$ und der zugehörigen gewichteten Integrale $a_n(q)$ (Gl. (8) des Textes) über $a(q)$ für amorphe $\text{TM}_{80}\text{M}_{20}$ -Legierungen.

beiträge der beiden s-Unterbänder ist von Kaul et al. /32/ aus Messungen der spontanen magnetischen Widerstandsanisotropie experimentell ermittelt worden. Der mittlere atomare Abstand kann in guter Näherung durch $a \approx 2.6 \text{ \AA}$ approximiert werden, und für den Fermi-Wellenvektor wird $k_F \approx 1.5 \text{ \AA}^{-1}$ angesetzt. Eine Zusammenstellung der genannten magnetischen und elektrischen Größen findet sich in Tabelle I. Darüber hinaus muß zur Berechnung der Einfriertemperatur T_0 das Verhältnis $J_{sd}(0)/E_F$ zwischen sd-Austauschenergie und Fermi-Energie bekannt sein. In der Näherung freier Elektronen und unter der Annahme $E_F = 8 \text{ eV}$ erhält man aus Gl. (7) für dieses Verhältnis $J_{sd}/E_F = 0.75/8 = 0.094$ (Kapitel 7), das etwa dem von Herzer /20/ benutzten Wert entspricht.

Die mit diesem Verhältnis berechneten Werte für die charakteristischen Temperaturen T_0 und θ sind in Tabelle III aufgelistet. Aus dieser Zusammenstellung wird ersichtlich, daß die Temperatur T_0 , unterhalb der die kohärenten Elektron-Magnon Streuprozesse ausfrieren, bei den Ni-reichen Zusammensetzungen unterhalb des untersuchten Temperaturbereiches liegt, aber zur Fe-reichen Seite hin bis auf etwa 20 K ansteigt. Für den direkten Vergleich zwischen Theorie und Experiment sind die kohärenten (S_c^m) und inkohärenten (S_i^m) Thermokraftbeiträge nach Gl. (6)

Tabelle III: Gegenüberstellung experimentell beobachteter und im Rahmen von Herzner's Modell /20/ über Gl. (6) und (17) theoretisch berechneter magnetischer Thermokraftbeiträge. Die theoretischen Werte für die charakteristischen Temperaturen T_0 und θ und das gewichtete Integral $a_1(2k_F)$ über den statischen magnetischen Strukturfaktor sind mit den in Tabelle I angegebenen magnetischen Größen abgeschätzt worden.

x (at%)	T_0 (K)	θ (K)	$a_1(2k_F)$	$S_C^m(50K)$ ($\mu V/K$)	$S_I^m(50K)$ ($\mu V/K$)	$S_{ber}^m(50K)$ ($\mu V/K$)	$S_{exp}(50K)$ ($\mu V/K$)	T_{max}/T_c (ber) (exp)	$S_{ber}^m(300K)$ ($\mu V/K$)	$S_{exp}(300K)$ ($\mu V/K$)
10	0.4	92.7	2.46	-0.014	-0.053	-0.067	-1.42	0.77	0	-1.45
13	0.8	113.3	2.38	-0.016	-0.052	-0.067	-1.52	0.75	0	-2.48
16	1.4	144.2	2.27	-0.016	-0.044	-0.059	-1.75	0.74	-0.06	-4.30
20	2.3	166.5	2.13	-0.016	-0.039	-0.055	-1.43	0.73	-0.12	-4.65
30	5.1	202.6	1.85	-0.021	-0.041	-0.062	-1.98	0.71	-0.26	-7.15
40	7.7	207.7	1.66	-0.027	-0.048	-0.075	-1.70	0.70	-0.39	-7.18
50	15.5	314.2	1.52	-0.019	-0.027	-0.046	-1.86	0.69	-0.50	-7.18
60	19.0	303.8	1.42	-0.032	-0.044	-0.076	-1.34	0.69	-1.65	-5.91
70	19.0	260.9	1.33	-0.057	-0.079	-0.136	-1.98	0.68	-1.76	-5.73
80	15.7	171.2	1.25	-0.130	-0.203	-0.333	-2.00	0.67	-3.68	-4.14

T_{max} aus Extrapolation der Ableitung dS/dT nach höheren Temperaturen.

bei $T = 50$ K berechnet worden (siehe Tabelle III). Wie ein Blick auf Tabelle III zeigt, dominieren die inkohärenten Anteile zum magnetischen Thermokraftbeitrag bei dieser Temperatur über die kohärenten Anteile, so daß in der Umgebung dieser Bezugstemperatur von theoretischer Seite her eine Temperaturabhängigkeit für S zu erwarten ist, die entgegen dem experimentellen Befund einem $T^{3/2}$ -Gesetz nahe kommen sollte. Darüber hinaus zeigen diese Abschätzungen, daß $S_{\text{ber}}^m(50 \text{ K})$, das nur für die Fe-reichen Legierungen ($x \geq 70$) deutlich außerhalb der experimentellen Fehlermarge liegt, um mehr als einen Faktor 20 kleiner als die experimentellen Daten ist. Svoboda et al. /23/ kommen qualitativ zu den gleichen Ergebnissen, obwohl bei ihnen die Abweichungen zwischen Theorie und Experiment deutlich kleiner sind als in der vorliegenden Arbeit. Der quantitative Unterschied ist nur darauf zurückzuführen, daß die genannten Autoren die Einfriertemperatur T_0 zu niedrig abschätzen ($T_0 < 2$ K) und Gl. (13b) in einem Temperaturbereich diskutieren, in dem konsistenterweise Gl. (13a) oder Gl. (6) zur Anwendung kommen sollte. Da in dem Temperaturbereich $T \leq 8$ K die Steigung von S schon erheblich kleiner ist als für $T > T_0$, erscheinen die Abweichungen $S_{\text{ber}}^m - S_{\text{exp}}^m$ für die Theorie günstiger.

Im Rahmen einer Molekularfeld-Näherung gibt Herzer /20/ auch eine Beziehung für die Thermokraft amorpher ferromagnetischer Legierungen an, die das $S^m(T)$ -Verhalten interpolatorisch beschreibt und nur bei hohen Temperaturen gültig ist. Der abgeleitete Ausdruck

$$S^m(T) = - S_0^m a_1 (2k_F)(k_F a)^2 \langle S_{ic}^Z \rangle \langle S_{ic}^Z \rangle h^2 \left\{ \coth^2(h/2) - 1 \right\} \quad , \quad (17)$$

in dem $h = 3(T_C/T) \langle S_{ic}^Z \rangle / \langle S_i(S_i+1) \rangle_C$ den Molekularfeld-Parameter bezeichnet und $\langle S_{ic}^Z \rangle = \langle S_{ic}^Z \rangle \sigma(T)$ den thermischen und konfigurationsgemittelten Erwartungswert der Magnetisierung, verschwindet sowohl bei $T = 0$ K als auch bei der Curie-Temperatur T_C und stellt insofern eine bessere Näherung dar als die von Kasuya /17/ für kristalline Ferromagnete angegebene Beziehung (Gl. (3)), die für $T \rightarrow 0$ K divergiert. Für $\alpha > 1$ impliziert dieses Verhalten in Übereinstimmung mit den vorliegenden experimentellen Ergebnissen ein Minimum im $S(T)$ -Verlauf.

Alle in Gl. (17) auftretenden physikalischen Größen sind hinreichend genau bekannt, so daß auch hier ein quantitativer Vergleich zwischen Theorie und Experiment möglich ist. Die relative Magnetisierung $\sigma(T) = M(T)/M(0)$ kann zu diesem Zweck mit der von Handrich und Kobe /40/ angegebenen Beziehung für amorphe Ferromagnete berechnet werden, die durch eine geeignete Wahl des Fluktuationsparameters der Abflachung des Magne-

tisierungsverlaufs $\sigma(T)$ gegenüber kristallinen Ferromagneten gerecht wird. In Tabelle III sind die mit Gl. (17) ermittelten theoretischen Werte für $T_{\max}/T_c$ der amorphen $\text{Fe}_x\text{Ni}_{80-x}\text{B}_{20}$ -Legierungen den analogen experimentellen Werten gegenübergestellt. Die theoretischen Werte für $T_{\max}/T_c$ nehmen mit abnehmender Fe-Konzentration zu, wobei dieses Verhältnis durch die Berücksichtigung eines linearen negativen (positiven) nicht-magnetischen Thermokraft Beitrags $S^{\text{nm}}(T)$ zu höheren (tieferen) Werten verschoben werden kann. Bei den Ni-reichen Zusammensetzungen ist diese Übereinstimmung zwischen Theorie und Experiment nahezu perfekt, so daß eine durchaus befriedigende Übereinstimmung der Theorie mit den experimentellen Ergebnissen vorzuliegen scheint. Diese Übereinstimmung wird jedoch dadurch getrübt, daß sich wie bei der Spinwellen-Näherung (Gl. (6)) erhebliche Diskrepanzen in der Größenordnung von S^{m} zwischen den theoretischen Voraussagen (Gl. (17)) und dem experimentellen Datenmaterial ergeben. So ist z. B. die theoretische $|S^{\text{m}}(T)|$ Funktion für die Ni-reichen Zusammensetzungen im gesamten Temperaturbereich ($T \leq T_c$) deutlich kleiner als $0.1 \mu\text{V/K}$ und nimmt nur für Fe-reiche Zusammensetzungen ($x \geq 70$) Werte an in der Größenordnung der experimentellen Ergebnisse. Zur Dokumentation dieses Befunds sind in Tabelle III die mit Gl. (17) bei Raumtemperatur berechneten $S^{\text{m}}(300 \text{ K})$ -Werte den entsprechenden experimentellen Ergebnissen gegenübergestellt. Aus dieser Gegenüberstellung wird auch ersichtlich, daß die Konzentrationsabhängigkeit von $S(300 \text{ K}, x)$, die bei etwa gleichem Fe/Ni Verhältnis ein ausgeprägtes Maximum aufweist (siehe Abbn. 3 und 4), durch Gl. (17) nicht reproduziert wird.

Sowohl in der Spinwellen- (Gl. (6)) als auch in der Molekularfeld-Näherung (Gl. (17)) ist das Verhältnis α der partiellen Restwiderstände ein entscheidender Parameter für die Größenordnung von S^{m} . Bei schwach ferromagnetischen Legierungen ist im Rahmen von Herzer's Theorie wegen $\alpha \approx 1$ der magnetische Thermokraftbeitrag vernachlässigbar klein. Im Gegensatz dazu zeigen die experimentellen Ergebnisse, daß auch bei den schwach ferromagnetischen Ni-reichen Legierungen die Temperaturabhängigkeit von S wesentlich durch den Magnetismus mit geprägt wird (Abb. 1 und 2), obwohl gegenüber den eher stark ferromagnetischen Fe-reichen Zusammensetzungen der Absolutwert von S deutlich reduziert ist. Kaul et al. /32/ haben bei der experimentellen Analyse der spontanen magnetischen Widerstandsanisotropie $\Delta\rho/\rho$ der amorphen $\text{Fe}_x\text{Ni}_{80-x}\text{B}_{20}$ -Legierungen auf die von Campbell et al. /41/ für verdünnte kristalline Ferromagnete abgeleiteten Verknüpfung zwischen $\Delta\rho/\rho$ und α zurückgegriffen. Maloze-

hoff /42/ hat dagegen kürzlich gezeigt, daß die Verknüpfung zwischen $\Delta\rho/\rho$ und α in dieser Form nicht auf konzentrierte amorphe Ferromagnete anwendbar ist und gewisser Erweiterungen bedarf. Aber die mit der modifizierten Formel von Malozemoff /42/ ermittelten α -Werte (siehe z. B. /23/) bedingen allenfalls eine Erhöhung der theoretischen Werte für die Thermokraft (Gl. (6) und (17)) um einen Faktor zwei, so daß grundsätzlich alle bisher gezogenen Schlußfolgerungen bezüglich Herzer's Theorie nicht beeinträchtigt werden.

Abschließend soll noch einmal auf das Thermokraftverhalten im kritischen Bereich und für Temperaturen groß gegen T_c eingegangen werden. Die wichtigen Merkmale der Ergebnisse in diesem Temperaturbereich können wie folgt zusammengefaßt werden: (i) die Thermokraft der Legierungen mit $x = 10, 13$ und 16 at% Fe ist oberhalb $T = 190, 205$ bzw. 220 K gemäß

$$S(T) = aT + b \quad (18)$$

näherungsweise linear von der Temperatur abhängig, (ii) der Koeffizient a ist positiv und annähernd unabhängig von der Fe-Konzentration, während b von x abhängt, und (iii) bei T_c ist keine Anomalie in der $S(T)$ -Abhängigkeit zu beobachten, obwohl der spezifische elektrische Widerstand (ρ) eine scharfe Anomalie bei T_c aufweist /24/. Im Gegensatz dazu ist bei kristallinen Ferromagneten eine scharfe Anomalie sowohl für ρ als auch für S beobachtet worden. In diesem Sinne ist das $S(T)$ -Verhalten magnetischer metallischer Gläser ungewöhnlich und kann mit keinem der diskutierten Transport-Modelle erklärt werden.

Die in Kapitel 7 dargestellten Widerstandsergebnisse magnetisch verdünnter a-Fe-Ni-Legierungen weisen bis weit in den paramagnetischen Bereich hinein eine nicht verschwindende Verteilung lokaler Austauschfelder aus. Danach sollte die Elektronenstreuung auf einer viel kleineren Zeitskala stattfinden als die Fluktuationen der Spin-Cluster, so daß das bei der Molekularfeld-Näherung in die elektronischen Streuraten eingehende Austauschfeld von dem Weiß'schen Molekularfeld unterschieden werden muß, das die mittlere makroskopische Magnetisierung bestimmt. Folglich sollte auch im Thermokraft-Verhalten oberhalb der Ordnungstemperatur noch ein magnetischer Thermokraft-Beitrag vorhanden sein, da zudem nach neueren theoretischen Analysen magnetischer Beiträge zur thermischen Ausdehnung von Übergangsmetallen /43/ und spinpolarisierten photoemissionsspektroskopischen Untersuchungen dieser Materialien /44/ weitere Anhaltspunkte für die Persistenz lokaler magnetischer Momente

oberhalb T_C vorliegen und im Gegensatz zu den Annahmen der einfachen Stoner-Theorie die Aufspaltung der d-Bänder bei T_C nicht verschwinden sollte (d. h. $\alpha \neq 1$). Eine eingehende theoretische Analyse der Auswirkungen kurzreichweitiger magnetischer Ordnung auf das Transportverhalten metallischer Gläser im paramagnetischen Bereich steht aber zur Zeit noch aus.

IV. Schlußfolgerungen

Ein quantitativer Vergleich der Ergebnisse der an amorphen $\text{Fe}_x\text{Ni}_{80-x}\text{B}_{20}$ Legierungen für $10 \leq x \leq 80$ im Temperaturbereich 4.2 - 300 K durchgeführten Thermokraftmessungen mit den Voraussagen der verfügbaren Transport-Theorien hat gezeigt, daß keines dieser Modelle umfassend genug ist, die Vielfalt der Ergebnisse zu erklären. Im Gegensatz zu der weit verbreiteten Auffassung, daß das nicht-lineare Thermokraft-Verhalten in magnetischen metallischen Gläsern durch den Kondo-Effekt verursacht wird, zeigen die erhaltenen Ergebnisse klar, daß für $T < T_C$ die funktionale Abhängigkeit der Thermokraft von der Temperatur hauptsächlich durch die magnetische Streuung der Leitungselektronen an den momenttragenden Atomen bestimmt wird. Die sowohl in der Größenordnung als auch im Temperaturgang von S bestehenden offensichtlichen Diskrepanzen zwischen Theorie und Experiment müssen den im Rahmen der angeführten Theorien gemachten Annahmen und Näherungen angelastet werden. In der Arbeit von Herzer betrifft dies insbesondere die Annahme bezüglich der Existenz einer gemeinsamen Relaxationszeit für die elektrischen und thermoelektrischen Effekte. Eine theoretische Überprüfung dieses Zusammenhangs steht bisher noch aus. Um zu einem dem Widerstandsverhalten äquivalenten Verständnis der thermoelektrischen Phänomene zu gelangen und über den qualitativen Charakter der derzeitigen Theorien hinauszukommen, müssen wohl allgemeinere theoretische Ansätze zur Berechnung der Thermokraft kristalliner und amorpher Ferromagnete herangezogen werden. Hier bietet sich z. B. das Variationsprinzip /45/ an oder die von Christoph und Mitarbeitern /46/ diskutierte lineare Antworttheorie des thermoelektrischen Transports auf der Basis von Zubarev's statistischer Thermodynamik des Nichtgleichgewichts.

§9 Abschließende Bemerkungen

Im Verlauf der Diskussion ist dargelegt worden, daß die Transporteigenschaften ferromagnetischer amorpher Übergangsmetall-Legierungen in komplizierter Weise von der elektronischen Struktur und der nicht-periodischen Anordnung der atomaren Bausteine abhängen. Obwohl der spezifische elektrische Widerstand ρ die meist untersuchte Transportgröße metallischer Gläser ist, konnte sich in den bisherigen Untersuchungen keiner der in der Einführung beschriebenen Streumechanismen als dominant etablieren. Sorgfältige Analysen der in der vorliegenden Arbeit erhaltenen Widerstandsergebnisse haben jedoch gezeigt, daß der Einfluß magnetisch fernegeordneter Phasen auf das Widerstandsverhalten metallischer $\text{TM}_{80}\text{M}_{20}$ -Gläser in durchaus befriedigender Weise durch das amorph Systemen angepaßte sd-Austausch Modell beschrieben werden kann. Insbesondere findet die für schwach ferromagnetische Systeme theoretisch vorhergesagte $T^{3/2}$ -Abhängigkeit des Spinunordnungs-Widerstands im Spinwellen-Bereich und die Größenordnung und Konzentrationsabhängigkeit dieses Beitrags in den experimentellen Ergebnissen eine eindrucksvolle Bestätigung, so daß der magnetische Widerstandsbeitrag vergleichbarer Systeme annähernd quantitativ vorhergesagt werden kann, wenn eine vollständige magnetische Charakterisierung dieser Materialien vorliegt. Auch die für stark ferromagnetische amorphe Systeme theoretisch vorhergesagte Zunahme im Exponenten des Tieftemperatur Potenzgesetzes für ρ_{mag} konnte experimentell verifiziert werden. Hier wird allerdings der magnetische Anteil zum Gesamtwiderstand wesentlich durch Abweichungen von der Matthiessen'schen Regel beeinflusst, deren effektiver Beitrag in kritischer Weise von dem Verhältnis $\alpha = \rho_o^*/\rho_o^\dagger$ der partiellen Restwiderstandsbeiträge bestimmt wird. Der separierte magnetische Widerstandsbeitrag kann ohne die genaue Kenntnis von α nicht quantitativ mit magnetischen Größen in Beziehung gesetzt werden. Ein tieferes Verständnis dieser Zusammenhänge verlangt zunächst nach einer Beilegung der Kontroverse bezüglich der Ermittlung von α aus Messungen der spontanen magnetischen Widerstandsanisotropie, deren Untersuchung bisher zu wenig experimentelle Aufmerksamkeit gewidmet worden ist. Auch das Verhalten des magnetischen Widerstandsbeitrags im kritischen Bereich und oberhalb der Ordnungstemperatur T_c ist noch weitgehend unverstanden. Eine umfassende Theorie dieser Phänomene, die sowohl der Persistenz kurzreichweitiger Ordnung des Spinsystems als auch der magnetischen Aufspaltung der Elektronen Bänder oberhalb T_c Rechnung tragen muß, steht zur Zeit noch aus und stellt eine Aufgabe für die Zukunft dar.

Die Thermokraft S ist unbestritten die empfindlichste Transportgröße eines Metalls. Auf Grund neuerer theoretischer Entwicklungen hat die Messung dieses Transportkoeffizienten bei nicht-magnetischen amorphen Metallen wegen der Möglichkeit zur Untersuchung der Elektron-Phonon Wechselwirkung zunehmend an Bedeutung gewonnen. Die in der vorliegenden Arbeit an ferromagnetischen amorphen $\text{TM}_{80}\text{M}_{20}$ -Legierungen durchgeführten Untersuchungen haben gezeigt, daß das $S(T)$ -Verhalten dieser Materialien weitaus komplexer als das nicht-magnetischer Systeme ist. Hier konnte zwar eine Korrelation des thermoelektrischen Transports mit den magnetischen Eigenschaften nachgewiesen werden, aber die Komplexität dieses Transportkoeffizienten erlaubt zur Zeit keine einfache Separation der durch verschiedene Mechanismen verursachten Thermokraftbeiträge. Diese Schwierigkeiten sind nicht spezifisch für amorphe Systeme, sondern betreffen auch korrespondierende kristalline Materialien. Eine Übereinstimmung zwischen Theorie und Experiment ist nur mit unphysikalischen Werten für die in den theoretischen $S(T)$ -Beziehungen auftretenden magnetischen oder elektronischen Größen zu erreichen. Die Interpretation der Thermokraft magnetischer Übergangsmetall-Systeme wirft somit nach wie vor Probleme auf, da die Entwicklungen auf theoretischem Gebiet den meßtechnischen Möglichkeiten hinterherlaufen. Neben der magnetischen Ordnung spielen hier offensichtlich Bandstruktureffekte eine noch wesentlich diffizilere Rolle als beim spezifischen elektrischen Widerstand. Das Mott'sche s - d Modell, das solche Effekte in gewissem Grade berücksichtigt, scheint jedoch noch zu grob zu sein. In einer allgemeineren und quantitativen Theorie sollten sicherlich Spinfluktuationen und Bandstruktureffekte gleichberechtigt behandelt werden, d. h. für eine quantitative Behandlung der Thermokraft kristalliner und amorpher Ferromagnete muß eine Theorie schon in ihrem Ansatz viel detaillierter sein und folglich in ihrer Durchführung erheblich komplizierter werden. Ein tieferes Verständnis des thermoelektrischen Transports in ferromagnetischen Materialien bleibt somit zukünftigen theoretischen Entwicklungen vorbehalten, die wohl ihre größte Perspektive auf der Grundlage der inversen linearen Antworttheorie haben.

Persönliche Anmerkung

Die Anregung zu dieser Arbeit und ihre ideelle und materielle Förderung ist das Verdienst von Herrn Prof. Dr. M. Rosenberg, wofür ich ihm sehr zu Dank verpflichtet bin.

Viele anregende und fruchtbare Diskussionen mit Herrn Prof. Dr. S. N. Kaul und Herrn Dr. G. Herzer trugen wesentlich zum Fortgang der Arbeit bei.

Besonderen Dank schulde ich meinem "Mitstreiter" Herrn R. Wernhardt, der weder Zeit noch Mühe gescheut hat, um mit mir das Brot des physikalischen Alltags und seinen reichen experimentellen Erfahrungsschatz zu teilen.

LITERATURVERZEICHNIS

Zu Kapitel 1

- /1/ N. W. Ashcroft, N. D. Mermin, Solid State Physics (Holt, Rinehart und Winston, New York, 1976).
- /2/ B. H. Kear, Spektrum der Wissenschaft, Dez. 1986, 130.
- /3/ D. Shechtman, I. Blech, D. Gratias, J. W. Cahn, Phys. Rev. Lett. 53, 1951 (1984).
- /4/ B. L. Altshuler, A. G. Aronov, Electron-Electron Interactions in Disordered Systems, herausgeg. von A. L. Efros und M. Pollak (North-Holland, Amsterdam, 1985), 1.
- /5/ A. I. Gubanov, Sov. Phys. Solid State 2, 468 (1960).
- /6/ A. R. Ferchmin, S. Kobe, Amorphous Magnetism and Metallic Magnetic Materials Digest (North-Holland, Amsterdam, 1983).
- /7/ K. Moorjani, J. M. D. Coey, Magnetic Glasses (Elsevier, Amsterdam, 1984).
- /8/ J. M. Ziman, Electrons and Phonons (Oxford Univ. Press, Oxford, 1962).
- /9/ J. H. Mooij, phys. stat. sol. (a) 17, 512 (1973).
- /10/ C. C. Tsuei, Phys. Rev. Lett. 57, 1943 (1986).
- /11/ Ö. Rapp, S. M. Bhagat, H. Gudmundsson, Solid State Commun. 42, 741 (1982).
- /12/ R. W. Cochrane, J. O. Strom-Olsen, Phys. Rev. B 29, 1088 (1984).
- /13/ K. V. Rao, Amorphous Metallic Alloys, herausgeg. von F. E. Luborsky (Butterworths Monographs in Materials, 1983), 401.
- /14/ U. Mizutani, Prog. Mater. Sci. 28, 97 (1983).
- /15/ D. G. Naugle, J. Phys. Chem. Solids 45, 367 (1984).
- /16/ G. Böhnke, M. Rosenberg, J. Physique (Paris) 41, C8-481 (1980).
- /17/ W. H. Kettler, R. Wernhardt, M. Rosenberg, J. Appl. Phys. 53, 8248 (1982).
- /18/ S. Basak, S. R. Nagel, B. C. Giessen, Phys. Rev. B 21, 4049 (1983).
- /19/ J. M. Ziman, Models of Disorder (Cambridge University Press, Cambridge, 1979).
- /20/ J. M. Ziman, Phil. Mag. 6, 1013 (1961).
- /21/ T. E. Faber, J. M. Ziman, Phil. Mag. 11, 153 (1965).
- /22/ N. F. Mott, Phil. Mag. 26, 1249 (1972).
- /23/ D. Belitz, W. Götze, J. Phys. C 15, 981 (1982).
- /24/ D. Belitz, W. Schirmacher, J. Phys. C 16, 313 (1983).

- /25/ R. Richter, M. Wolf und F. Goedsche, phys. stat. sol. (b) 95, 473 (1979).
- /26/ R. Richter, F. Goedsche, phys. stat. sol. (b) 123, 143 (1984).
- /27/ G. Herzer, Dissertation, Universität Stuttgart (1983).
- /28/ P. A. Lee, T. V. Ramakrishnan, Rev. Mod. Phys. 54, 287 (1985).
- /29/ A. K. Sinha, Phys. Rev. B 1, 4514 (1970).
- /30/ G. Busch, H.-J. Güntherodt, Solid State Phys. 29, 235 (1974).
- /31/ L. V. Meisel, P. J. Cote, Phys. Rev. B 15, 2970 (1977).
- /32/ P. J. Cote, L. V. Meisel in Glassy Metals: Ionic Structure, Electronic Transport and Crystallization, herausgeg. von H.-J. Güntherodt und H. Beck (Springer-Verlag, Berlin, 1981), 141.
- /33/ J. Jäckle, J. Phys. F 10, L43 (1980).
- /34/ J. L. Opsal, B. J. Thaler, J. Bass, Phys. Rev. Lett. 36, 1211 (1976).
- /35/ D. Brown, S. Fairbairn, G. J. Morgan, phys. stat. sol. (b) 93, 617 (1979).
- /36/ W. Götze, Solid State Commun. 27, 1393 (1978); J. Phys. C 12, 1279 (1979).
- /37/ M. Jonson, M. Girvin, Phys. Rev. Lett. 43, 1447 (1979).
- /38/ R. W. Cochrane, R. Harris, J. Strom-Olsen, M. Zuckermann, Phys. Rev. Lett. 35, 676 (1975).
- /39/ G. S. Grest, S. R. Nagel, Phys. Rev. B 19, 3571 (1979).
- /40/ J. L. Black, K. Vladar, A. Zawadowski, Phys. Rev. B 26, 1559 (1982).
- /41/ A. B. Kaiser, phys. stat. sol. (b) 136, 313 (1986).
- /42/ A. Fert, I. A. Campbell, J. Phys. F 6, 849 (1976).
- /43/ I. A. Campbell, A. Fert in Ferromagnetic Materials, herausgeg. von E. P. Wohlfarth (North-Holland, Amsterdam, 1982), Bd. 3, 474.
- /44/ I. Ya. Korenblit, J. Phys. F. 12, 1259 (1982).
- /45/ G. Herzer, J. Magn. Magn. Mater. 45, 345 (1984).
- /46/ F. J. Blatt, P. A. Schroeder, C. L. Foiles, D. Greig, Thermoelectric Power of Metals (Plenum Press, New York, 1976).
- /47/ T. Kasuya, Prog. Theoret. Phys. (Kyoto) 22, 227 (1959).
- /48/ W. G. Baber, Proc. Roy. Soc. (London) A158, 383 (1937).

Zu Kapitel 2

- /1/ G. Böhnke, M. Rosenberg, J. Phys. (Paris) Colloq. 41, C8-481 (1980).
- /2/ W. H. Kettler, R. Wernhardt, M. Rosenberg, J. Appl. Phys. 53, 8248 (1982).
- /3/ W. H. Kettler, R. Wernhardt, M. Rosenberg, Rev. Sci. Instrum. 57, 3053 (1986).
- /4/ S. N. Kaul, W. H. Kettler, M. Rosenberg, Phys. Rev. B 33, 4987 (1986).
- /5/ S. N. Kaul, W. H. Kettler, M. Rosenberg, Phys. Rev. B 35, 7153 (1987).
- /6/ W. H. Kettler, M. Rosenberg, J. Phys. F: Met. Phys. 17, L209 (1987).
- /7/ R. Richter, M. Wolf und F. Goedsche, phys. stat. sol. (b) 95, 473 (1979); R. Richter, F. Goedsche, phys. stat. sol. (b) 123, 143 (1984).
- /8/ G. Herzer, J. Magn. Magn. Mater. 45, 345 (1984); Dissertation, Universität Stuttgart (1983), unveröffentlichte Ergebnisse.
- /9/ W. H. Kettler, S. N. Kaul, M. Rosenberg, Phys. Rev. B 29, 6950 (1984).
- /10/ T. Kasuya, Prog. Theoret. Phys. (Kyoto) 22, 227 (1959).

Zu Kapitel 3

- /1/ K. Moorjani, J. M. D. Coey, Magnetic Glasses (Elsevier, Amsterdam, 1984).

Zu Kapitel 4

- /1/ H. H. Wieder, Laboratory Notes on Electrical and Galvanomagnetic Measurements (Elsevier, Amsterdam, 1979).
- /2/ A. E. Stephans, H. J. Mackey, J. R. Sybert, J. Appl. Phys. 42, 2592 (1971).
- /3/ S. Jandl, K. D. Usadel, G. Fischer, Rev. Sci. Instrum. 45, 1479 (1974).
- /4/ M. Regelsberger, Dissertation, Ruhr-Universität Bochum (1984).
- /5/ M. Regelsberger, R. Wernhardt, M. Rosenberg, J. Phys. E 19, 525 (1986).

- /6/ K. Aso, M. Hayakawa, K. Hotai, S. Uedaira, Y. Ochiai, Y. Makino, Proc. 4th Int. Conf. on Rapidly Quenched Metals, Sendai, Japan, 379 (1981).

Zu Kapitel 5

- /1/ R. H. Freeman, J. Bass, Rev. Sci. Instrum. 41, 1171 (1970).
/2/ W. Hellenthal, H. Ostholt, Z. Angew. Phys. 28, 313 (1970).
/3/ D. Korn, W. Mürer, Z. Phys. B 27, 309 (1977).
/4/ R. D. Barnard, Thermoelectricity in Metals and Alloys (Taylor and Francis LTD, London, 1972); F. J. Blaatt, P. A. Schroeder, C. L. Foiles, Thermoelectric Power of Metals (Plenum, New York, 1976).
/5/ J. Kopp, G. A. Slack, Cryogenics 11, 22 (1971).
/6/ H. S. Carslaw, J. C. Jaeger, Conduction of Heat in Solids (Oxford University, Oxford, 1947); Y. S. Touloukian, R. W. Powell, C. Y. Ho, M. C. Nicolaou, Thermophysical Properties of Matter, Bd. 10 (IFI/Plenum, New York, 1973); E. W. Washburn, International Critical Tables (McGraw-Hill, New York, 1933).
/7/ J. H. McTaggart, G. A. Slack, Cryogenics 9, 384 (1969).
/8/ M. Regelsberger, R. Wernhardt, M. Rosenberg, J. Phys. E 19, 525 (1986).
/9/ R. B. Roberts, Philos. Mag. 36, 91 (1977); Philos. Mag. B 34, 1125 (1981).
/10/ L. L. Sparks, R. L. Powell, W. J. Hall, NBS Monograph 124 (1972).
/11/ G. Varhegyi, Info. Process. Lett. 2, 24 (1973).
/12/ W. H. Kettler, R. Wernhardt, M. Rosenberg, J. Appl. Phys. 53, 8248 (1982); W. H. Kettler, S. N. Kaul, M. Rosenberg, Phys. Rev. B 29, 6950 (1984).
/13/ M. N. Baibich, W. B. Muir, G. Belanger, J. Destry, H. S. Elzinga, P. A. Schroeder, Phys. Lett. 73, 328 (1979).

Zu Kapitel 6

- /1/ P. J. Cote und L. V. Meisel in Glassy Metals I: Ionic Structure, Electronic Transport and Crystallization, herausgegeben von H.-J. Güntherodt und H. Beck (Springer-Verlag, Berlin, 1981), S. 141.
/2/ R. Harris und J. O. Strom-Olsen in Glassy Metals II: Atomic Structure and Dynamics, Electronic Structure, Magnetic Properties, herausgegeben von H. Beck und H.-J. Güntherodt (Springer-Verlag, Berlin, 1983), S. 325.

- /3/ K. V. Rao in Amorphous Metallic Alloys, herausgegeben von F. E. Luborsky (Butterworths, London, 1983), S. 401.
- /4/ D. G. Naugle, J. Phys. Chem. Solids 45, 367 (1984).
- /5/ A. Mogro-Campero, J. L. Walter, Phys. Rev. B 20, 5030 (1979);
A. Mogro-Campero, Phys. Lett. 76A, 315 (1980).
- /6/ T. Stobiecki, H. Hoffmann, J. Phys. (Paris) Colloq. 41, C8-485 (1980).
- /7/ N. Banerjee, R. Roy, A. K. Majumdar, Phys. Rev. B 24, 6801 (1981).
- /8/ S. R. Nagel, Phys. Rev. B 16, 1694 (1977); man beachte, daß der Hochtemperatursausdruck für $W(T)$ in dieser Referenz fälschlicherweise einen zusätzlichen Term $W(0)$ enthält.
- /9/ S. N. Kaul, Phys. Rev. B 24, 6550 (1981); 27, 5761 (1983).
- /10/ G. Böhnke, S. N. Kaul, W. H. Kettler, M. Rosenberg, Solid State Commun. 48, 743 (1983).
- /11/ G. Bergmann, P. Marquardt, Phys. Rev. B 17, 1355 (1978).
- /12/ R. Richter, M. Wolf, F. Goedsche, phys. status solidi (b) 95, 473 (1979).
- /13/ E. Babic, Z. Mahronic, M. Ocko, A. Hamzic, K. Saub, B. Pivac, J. Magn. Magn. Mater. MAG-15-18, 934 (1980).
- /14/ E. Babic, M. Ocko, Z. Mahronic, A. S. Schaafsma, I. Vincze, J. Phys. (Paris) Colloq. 41, C8-473 (1980).
- /15/ E. Babic, R. Krsnik und H. H. Liebermann in Proceedings of the European Physical Society, Antwerpen, Belgium (unveröffentlicht).
- /16/ A. Mogro-Campero, J. L. Walter, T. E. Coan, Phys. Rev. B 24, 3579 (1981).
- /17/ T. Stobiecki, F. Stobiecki und H. Hoffmann in Proceedings of the Conference on Metallic Glasses: Science and Technology, Budapest, 1980, herausgegeben von C. Hargita, I. Bakonyi und T. Kemeny (Organizing Committee, Central Research Institute for Physics, Budapest, 1981), Bd. 1, S. 465.
- /18/ H.-J. Güntherodt und H. U. Künzi in Metallic Glasses, herausgegeben von O. Parks (American Society of Metals, New York, 1978), S. 247.
- /19/ J. M. Ziman, Philos. Mag. 6, 1013 (1961).
- /20/ R. Evans, D. A. Greenwood, P. Lloyd, Phys. Lett. 35A, 57 (1971).
- /21/ P. J. Cote, L. V. Meisel, Phys. Rev. Lett. 39, 102 (1977).
- /22/ K. Froböse, J. Jäckle, J. Phys. F 7, 2331 (1977).

- /23/ J. M. Ziman, Principles of the Theory of Solids (Cambridge University Press, Cambridge, England, 1972), S. 64.
- /24/ D. W. Marquardt, J. Soc. Ind. Appl. Math. 11, 431 (1963).
- /25/ E. Esposito, H. Ehrenreich, C. D. Gelatt, Phys. Rev. B 18, 3913 (1978).
- /26/ W. H. Kettler, R. Wernhardt, M. Rosenberg, J. Appl. Phys. 53, 8248 (1982).
- /27/ S. S. Shinozaki, A. Arrott, Phys. Rev. 152, 611 (1966).
- /28/ C. N. J. Wagner, J. Non-Cryst. Solids 31, 1 (1978).
- /29/ E. E. Semenenko, A. I. Sudovtsov, Sov. Phys.-JETP 15, 708 (1962).
- /30/ D. Greig, J. P. Harrison, Philos. Mag. 12, 71 (1965);
F. C. Schwerer, J. Silcox, Phys. Rev. Lett. 20, 101 (1968).
- /31/ S. N. Kaul, Solid State Commun. 15, 1821 (1974).
- /32/ M. Isshiki, Y. Fukuda, K. Igaki, J. Phys. F 14, 3007 (1984).
- /33/ R. Roy, A. K. Majumdar, Phys. Rev. B 31, 2033 (1985).

Man beachte, daß die Hochtemperaturbeziehung für $\rho(T)$ in dieser Referenz den Term $-2W(0)(1-S_0(2k_F))$ nicht enthält, wie ein Vergleich von Gl. (6) aus Ref. 33 mit Gl. (8b) der vorliegenden Arbeit zeigt. Diese Diskrepanz ist auf die Benutzung eines in Ref. 6 in der Ableitung der Widerstandsbeziehung für $\rho(T \geq \theta_D)$ angegebenen fehlerhaften Hochtemperaturausdrucks für $W(T)$ zurückzuführen, die in Ref. 33 falsche theoretische Raumtemperaturwerte für ρ ergibt.

- /34/ F. E. Luborsky, J. J. Becker, J. L. Walter, D. L. Martin, IEEE Trans. Magn. MAG-16, 521 (1980).
- /35/ S. N. Kaul, IEEE Trans. Magn. MAG-17, 1208 (1981).
- /36/ A. K. Majumdar, G. Üffinger, Solid State Commun. 51, 967 (1984).
- /37/ F. E. Luborsky, J. L. Walter, IEEE Trans. Magn. MAG-17, 1204 (1986).

Zu Kapitel 7

- /1/ R. Richter, M. Wolf und F. Goedsche, phys. stat. sol. (b) 95, 473 (1979).
- /2/ R. Richter, F. Goedsche, phys. stat. sol. (b) 123, 143 (1984).
- /3/ G. Bergmann und P. Marquardt, Phys. Rev. B 17, 1355 (1978).
- /4/ I. A. Campbell, A. Fert, Ferromagnetic Materials, Bd. 3, herausgeg. von E. P. Wohlfarth (North-Holland, Amsterdam, 1982), 747.
- /5/ F. Goedsche, A. Möbius, A. Richter, Phys. Sta. Sol. (b) 96, 279 (1979).

- /6/ N. F. Mott, Adv. Phys. 13, 325 (1964).
- /7/ P. J. Cote, L. V. Meisel, Glassy Metals I: Ionic Structure, Electronic Transport and Crystallization, herausgeg. von H.-J. Güntherodt und H. Beck (Springer-Verlag, Berlin, 1981), 141.
- /8/ K. V. Rao, Amorphous Metallic Alloys, herausgeg. von F. E. Luborsky (Butterworths Monographs in Materials, 1983), 401.
- /9/ S. Skalski, M. P. Kawatra, J. A. Mydosh und J. I. Budnick, Phys. Rev. B 2, 3613 (1970).
- /10/ G. Williams, J. Phys. Chem. Solids 31, 529 (1970).
- /11/ G. Williams, J. W. Loram, J. Phys. Chem. Solids 30, 1827 (1969).
- /12/ M. Regelsberger, M. Rosenberg, R. Wernhardt, J. Appl. Phys. 57, 3551 (1985).
- /13/ R. Job, M. Rosenberg, unveröffentlichte Ergebnisse.
- /14/ G. Hilscher, R. Haferl, H. Kirchmayr, M. Müller, H.-J. Güntherodt, J. Phys. F 11, 2429 (1981).
- /15/ R. J. Weiss, A. S. Marotta, J. Phys. Chem. Solids 2, 302 (1967).
- /16/ W. Kierspe, R. Kohlhaas, H. Gonska, Z. angew. Phys. 24, 28 (1967).
- /17/ S. R. Nagel, Phys. Rev. B 16, 1694 (1977).
- /18/ G. Baym, Phys. Rev. 135, 1691 (1964).
- /19/ G. Herzer, Dissertation, Universität Stuttgart (1983), unveröffentlichte Ergebnisse.
- /20/ P. Deppe, T. S. Park, L. Ressler, M. Rosenberg, M. Sostarich in Rapidly Quenched Metals V, herausgeg. von S. Steeb und H. Warlimont (North-Holland, Amsterdam, 1985), Bd. II, 1227.
- /21/ D. A. Goodings, Phys. Rev. 132, 542 (1963).
- /22/ R. Hasegawa, C. C. Tsuei, Phys. Rev. B 2, 1631 (1970); A. K. Nigam, A. K. Majumdar, Phys. Rev. B 27, 495 (1983).
- /23/ R. C. O'Handley, R. Hasegawa, C. P. Chen, Appl. Phys. Lett. 29, 330 (1976).
- /24/ E. P. Wohlfarth, Ferromagnetic Materials, Bd. 1, herausgeg. von E. P. Wohlfarth (North-Holland, Amsterdam, 1980), 1.
- /25/ S. N. Kaul, M. Rosenberg, Phys. Rev. B 27, 5698 (1983).
- /26/ D. G. Onn, A. Sundermier, J. K. Krause, J. Appl. Phys. 52, 1802 (1981).
- /27/ M. Ausloos, Magnetic Phase Transitions, herausgeg. von M. Ausloos und R. J. Elliot (Springer-Verlag, Berlin, 1983), 99.
- /28/ H. J. Eickelmann, M. M. Abd-Elmeguid, H. Micklitz, R. A. Brand, Phys. Rev. B 29, 2443 (1984).
- /29/ S. N. Kaul, J. Magn. Magn. Mater. 53, 5 (1985).

- /30/ K. Aso, M. Hayakawa, K. Hotai, S. Uedaira, Y. Ochiai, Y. Makino,
Proc. 4th Int. Conf. on Rapidly Quenched Metals, Sendai, Japan,
379 (1981).

Zu Kapitel 8

- /1/ S. R. Nagel, Phys. Rev. B 16, 1694 (1977); K. Froböse und J.
Jäckle, J. Phys. F 7, 2331 (1977); P. J. Cote und L. V. Meisel,
Phys. Rev. Lett. 39, 102 (1977).
- /2/ N. F. Mott, Philos. Mag. 26, 1249 (1972).
- /3/ R. W. Cochrane, R. Harris, J. O. Strom-Olsen, M. J. Zuckermann,
Phys. Rev. Lett. A35, 676 (1975); C. C. Tsuei, Solid State
Commun. 27, 691 (1978).
- /4/ G. S. Grest, S. R. Nagel, Phys. Rev. B 19, 3571 (1979).
- /5/ S. R. Nagel, Phys. Rev. Lett. 41, 990 (1978).
- /6/ U. Mizutani, Prog. Mat. Sci. 28, 97 (1983).
- /7/ D. G. Naugle, J. Phys. Chem. Solids 45, 367 (1984).
- /8/ B. L. Gallagher, J. Phys. F 11, L207 (1981); B. L. Gallagher,
D. Greig, ibid. 12, 1721 (1982).
- /9/ T. Matsuda, U. Mizutani, J. Phys. F 12, 1877 (1982); M. N.
Baibich, W. B. Muir, Z. Altounian, Tu Guo-Hua, Phys. Rev. B 26,
2963 (1982); 27, 619 (1983).
- /10/ R. Harris, B. G. Mulimani, Phys. Rev. B 27, 1382 (1983).
- /11/ A. B. Kaiser, Phys. Rev. B 29, 7088 (1984).
- /12/ H. Sato, T. Matsuda, U. Mizutani, Physica 144B, 173 (1987).
- /13/ M. N. Baibich, W. B. Muir, G. Belanger, J. Destry, H. S. Elzinga,
P. A. Schroeder, Phys. Rev. Lett. 73A, 328 (1979); B. Bhanu
Prasad, A. K. Bhatnagar, Solid State Commun. 41, 381 (1982).
- /14/ S. Basak, S. R. Nagel, B. C. Giessen, Phys. Rev. B 21, 4049
(1980); J. P. Carini, S. Basak, S. R. Nagel, J. Phys. (Paris)
Colloq. 41, C-8463 (1980).
- /15/ W. H. Kettler, R. Wernhardt, M. Rosenberg, J. Appl. Phys. 53,
8248 (1982).
- /16/ E. Babic, Z. Marohnic, M. Ocko, A. Hamzic, K. Saub, B. Pivac,
J. Magn. Magn. Mater. 15-18, 934(1980).
- /17/ T. Kasuya, Prog. Theor. Phys. 22, 227 (1959).
- /18/ T. Maeda, T. Somura, J. Phys. Soc. Jpn. 44, 148 (1978).
- /19/ I. Y. Korenblit, J. Phys. F 12, 1259 (1982).
- /20/ G. Herzer, J. Magn. Magn. Mater. 45, 345 (1984).

- /21/ R. D. Barnard, Thermoelectricity in Metals and Alloys (Taylor & Francis LTD, London, 1972).
- /22/ S. N. Bhatia, P. B. Joshi, J. Magn. Magn. Mater. 54-57, 255 (1986).
- /23/ P. Svoboda, P. Vasek, J. Magn. Magn. Mater. 62, 331 (1986).
- /24/ G. Böhnke, M. Rosenberg, J. Phys. (Paris) Colloq. 41, C8-481 (1980).
- /25/ S. N. Kaul, M. Rosenberg, Philos. Mag 44, 357 (1981); Solid State Commun. 41, 857 (1982).
- /26/ S. N. Kaul, IEEE Trans. Magn. MAG-17, 1208 (1981).
- /27/ N. V. Kolomoets, M. V. Verdernikov, Fiz. Tverd. Tela (Leningrad) 3, 2735 (1961) (Sov. Phys.-Solid State 3, 1996 (1962)).
- /28/ B. Pivac, E. Babic in Recent Developments in Condensed Matter Physics, herausgegeben von J. T. Devreese, L. F. Lemmens, V. E. van Doren und J. van Royen (Plenum, New York, 1981), Bd.2, S. 273.
- /29/ T. E. Faber, J. M. Ziman, Philos. Mag. 11, 153 (1965).
- /30/ T. Fujiwara, J. Non-Cryst. Solids 61&62, 1039 (1984).
- /31/ D. G. Onn, A. Sundermier, J. A. Krause, J. Appl. Phys. 52, 1802 (1981).
- /32/ S. N. Kaul, M. Rosenberg, Phys. Rev. B 27, 5689 (1983).
- /33/ S. N. Kaul, Phys. Rev. B 27, 6550 (1981).
- /34/ Die Wahl von ϵ_0 hat keinen wesentlichen Einfluß auf die Werte der Integrale ϕ_n , da innerhalb des interessierenden Temperaturbereichs die obere Grenze x_1 in guter Näherung nach unendlich gezogen werden kann. In den Gln. (2) und (3) wird $J_{sd}^{Ni}(0) = J_{sd}^{Fe}(0) = J_{sd}(0)$ gesetzt, da diese Größen von gleicher Größenordnung sind (siehe z. B. E. P. Wohlfarth in Ferromagnetic Materials, herausgegeben von E. P. Wohlfarth (North-Holland, New York, 1980), Bd. 1, S. 1).
- /35/ A. P. Malozemoff, P. H. Chang, M. Grimsditch, J. Appl. Phys. 50, 5896 (1979).
- /36/ Der phonon-drag Beitrag zur Thermokraft der untersuchten glasigen Legierungen sollte vernachlässigbar sein, da die Streuung von Phononen an Elektronen viel schwächer ist als die Streuung an den ungeordneten Ionen-Potentialen. In magnetischen Gläsern ist der Elektron-Phonon mass enhancement Effekt wegen der Unterdrückung der Elektron-Phonon Kopplung durch die magnetische Streuung unwirksam.
- /37/ S. S. Abel'skii, Y. P. Irkhin, Fiz. Tverd. Tela (Leningrad) 13, 2431 (1971) (Sov. Phys.-Solid State 13, 2035 (1972)).

- /38/ R. Richter, F. Goedsche, phys. stat. sol. (b) 123, 143 (1984).
- /39/ W. H. Kettler, M. Rosenberg, unveröffentlichte Ergebnisse.
- /40/ K. Handrich, S. Kobe, Amorphe Ferro- und Ferrimagnetika (Physik Verlag, Weinheim, 1980).
- /41/ I. A. Campbell, A. Fert, Ferromagnetic Materials, Bd. 3, herausgegeben von E. P. Wohlfarth (North-Holland, Amsterdam, 1982), 747.
- /42/ A. P. Malozemoff, Phys. Rev. B 32, 6080 (1985).
- /43/ A. J. Holden, V. Heine, J. H. Samson, J. Phys. F 14, 1005 (1984).
- /44/ M. Campagna, Physica 123B, 117 (1984).
- /45/ K. Durczewski, M. Ausloos, J. Magn. Magn. Mater. 51, 230 (1985);
J. Magn. Magn. Mater. 53, 243 (1985).
- /46/ G. Schubert, V. Christoph, phys. stat. sol. (b) 127, K89 (1985);
V. Christoph, G. Röpke, phys. stat. sol. (b) 131, 11 (1985).
- /47/ P. Deppe, T. S. Park, L. Ressler, M. Rosenberg, M. Sostarich in Rapidly Quenched Metals V, herausgeg. von S. Steeb und H. Warlimont (North-Holland, Amsterdam, 1985), Bd. II, 1227.

LEBENS LAUF

Vor- und Zuname	Wilhelm Heinrich Kettler
Geburtstag/-Ort	11. 3. 1953 in Bottrop
Staatsangehörigkeit	deutsch
Familienstand	ledig
Schul Ausbildung	1959-1963 Volksschule in Oberhausen 1963-1968 Realschule in Oberhausen Abschluß: mittlere Reife 1968-1971 Gymnasium in Bottrop Abschluß: Hochschulreife
Wehrdienst	1971-1972
Studium	1973-1982 Ruhr-Universität Bochum, Studiengang Physik, Abschluß: Diplom Seit 1983 wissenschaftlicher Mitarbeiter am Institut für Experimentalphysik an der Ruhr- Universität Bochum, Lehrstuhl VI (Prof. Dr. M. Rosenberg).

